

UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA

Facultad de Ciencias Exactas

Departamento de Física



# Mecanismos de excitación de la emisión láser en un plasma de xenón múltiplemente ionizado

Tesis para optar al grado de Doctor presentada por:

**Hugo Martín Sobral**

Director: Dr. Mario Gallardo

Asesor académico: Dra. María Cristina Caracoche

Lugar de realización: Centro de Investigaciones Ópticas (CIOp)

Abril de 1999

# Agradecimientos

El desarrollo de ésta tesis no hubiese podido ser llevada a cabo sin el apoyo de las siguientes personas a quienes deseo expresar mi agradecimiento.

En primer lugar quisiera agradecer al director del Centro de Investigaciones Opticas Dr. Mario Gallardo, por haberme permitido trabajar en el Instituto y haber dirigido éste trabajo de tesis. A la Dra. Cristina Caracoche por haber aceptado la Asesoría Académica de la misma.

A los Dres. Ricardo Duchowicz y Daniel Schinca por aportarme su experiencia en el laboratorio, sus ideas, consejos y discusiones indispensables para la concreción del análisis de la emisión.

Quisiera también expresar especialmente mi agradecimiento a la Dra. Mónica Raineri, por su invalorable ayuda en la realización de los cálculos teóricos utilizados.

A mis compañeros del grupo de Espectroscopía Atómica, Andres Callegari y Rafael Sarmiento por su colaboración en las medidas y obtención de espectros. A los Dres. Jorge Reyna Almandos y Fausto Bredice por sus aportes fundamentales en mi trabajo de investigación. A la calculista científico Nelly Cap por su ayuda en el desarrollo programas utilizados en la asignación iónica.

Finalmente quisiera agradecer a mi familia, que sin su constante apoyo y aliento hubiera sido imposible la concreción de éste trabajo.

# Índice

Lista de Figuras	6
Lista de Tablas	9
1 Introducción	10
1.1 Antecedentes . . . . .	10
1.2 Resumen y objetivos . . . . .	12
2 Fundamentos Teóricos	16
2.1 Elementos de espectroscopía atómica . . . . .	16
2.1.1 Transiciones radiativas . . . . .	16
Probabilidades de transición e intensidades de oscilador . . . .	16
2.1.2 Cálculos numéricos . . . . .	18
2.1.3 Ancho de línea . . . . .	19
Ancho de línea natural . . . . .	20
Ensanchamiento por efecto Doppler . . . . .	21
Ensanchamiento por colisiones . . . . .	22
2.2 Procesos atómicos en plasmas . . . . .	24
2.2.1 Introducción . . . . .	24
2.2.2 Procesos de excitación y desexcitación . . . . .	24
Equilibrio termodinámico . . . . .	25
La sección eficaz; frecuencias colisionales . . . . .	26
Relaciones entre la tasas de procesos directos e inversos . . . .	27
Excitación por impacto electrónico directo . . . . .	28
2.2.3 Modelos de plasma . . . . .	29
2.2.4 Coeficientes para las distintas tasas . . . . .	30
Excitación y desexcitación . . . . .	30
Ionización y recombinación de tres cuerpos . . . . .	32
Recombinación dielectrónica y radiativa . . . . .	33
2.2.5 Compresión radial de la descarga . . . . .	34
2.3 Dinámica del láser . . . . .	35
2.3.1 Introducción . . . . .	35

2.3.2	Condiciones para la inversión de población; ganancia . . . . .	36
2.3.3	Excitación del láser y ecuaciones de balance . . . . .	39
	Modelo de 4 niveles . . . . .	39
	Ecuaciones de balance para los fotones . . . . .	41
	Ecuaciones de balance para las poblaciones . . . . .	43
	Soluciones estacionarias; saturación de la ganancia . . . . .	44
	Oscilaciones en la emisión . . . . .	46
<b>3</b>	<b>Dispositivos y Resultados Experimentales</b>	<b>49</b>
3.1	Equipo experimental . . . . .	49
3.1.1	Fuente espectral . . . . .	50
3.1.2	Sistema de vacío . . . . .	51
3.1.3	Sistema de descarga . . . . .	51
3.1.4	Cavidad Resonante . . . . .	54
3.1.5	Instrumentos de medidas . . . . .	54
3.2	Resultados experimentales . . . . .	55
3.2.1	Medida y obtención de los espectros . . . . .	55
3.2.2	Asignación iónica; métodos semiempíricos . . . . .	55
3.2.3	Distribución temporal de la emisión espontánea . . . . .	59
3.2.4	Distribución temporal de la emisión láser . . . . .	64
<b>4</b>	<b>Análisis Teórico de la Emisión.</b>	<b>72</b>
4.1	Determinación de parámetros espectroscópicos . . . . .	72
4.1.1	Análisis espectral del Xe V . . . . .	72
4.1.2	Parámetros de las transiciones radiativas . . . . .	75
4.1.3	Ancho de línea . . . . .	79
4.2	Dinámica del plasma . . . . .	80
4.2.1	Modelo resuelto en tiempo . . . . .	80
	Introducción . . . . .	80
	Contracción del plasma . . . . .	82
	Ecuaciones de balance para las poblaciones . . . . .	84
4.2.2	Análisis del modelo . . . . .	89
4.3	Emisión estimulada . . . . .	98
4.3.1	Introducción . . . . .	98
4.3.2	Ecuaciones para la cavidad . . . . .	99
4.3.3	Procesos de bombeo . . . . .	101
4.3.4	Ganancia del láser . . . . .	102
	Medidas de ganancia . . . . .	102
	Cálculo de la ganancia . . . . .	104
4.3.5	Análisis de la distribución temporal . . . . .	104
	Introducción . . . . .	104
	Comportamiento oscilatorio . . . . .	105



Dependencia de la emisión con los parámetros . . . . .	108
<b>5 Conclusiones Generales</b>	<b>112</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>116</b>

# Lista de Figuras

2.1	Perfil de línea de una transición: $\delta\nu$ : ancho de línea (FWHM) . . . . .	20
2.2	Gráfico cualitativo de la sección eficaz de excitación para transiciones permitidas y prohibidas. . . . .	28
2.3	Esquema de bombeo para un láser de cuatro niveles. . . . .	40
2.4	Interpretación física del número de modos en la cavidad p (la superficie del rectángulo coincide con el del perfil de línea). . . . .	43
2.5	Oscilaciones en la emisión para un láser pulsado de CO <sub>2</sub> ; $\lambda = 10.6 \mu m$ (Ref [53]). . . . .	47
3.1	Diagrama de bloques del equipo experimental. . . . .	49
3.2	Diagrama de la fuente espectral. D es el diámetro interno del tubo (3, 5 mm). . . . .	50
3.3	Sistema de vacío. . . . .	51
3.4	Esquema del circuito de descarga. . . . .	52
3.5	Distribución temporal de la corriente y su tensión para: p = 40 mTorr, $I_{\max} = 4 \text{ kA}$ , $V_{\max} = 18 \text{ kV}$ . . . . .	53
3.6	Gráfico de intensidad en función de la presión para: 3310.4 Å (Xe IV), 5374.97 Å (Xe V), 3671.81 Å (Xe VI), 3635.5 Å (Xe VII). Ref: [26]. . . . .	56
3.7	Registro densitométrico de la intensidad de emisión en función de $\lambda$ , para distintas presiones. Línea continua: p= 50 mTorr, línea de rayas: p= 20 mTorr, línea punteada: p=10 mTorr. . . . .	57
3.8	Asignación iónica por medio de análisis temporal: Xe VII: (a) 3834 Å, (b) 3645 Å; Xe VIII: (c) 3350 Å, (d) 3246 Å . . . . .	57
3.9	Comportamiento temporal de la emisión espontánea para distintas presiones de la $\lambda = 3803.26 \text{ Å}$ (Xe V). (a) p= 20 mTorr, (b) p= 40 mTorr. $I_{\max} = 1.4 \text{ kA}$ . Diámetro del tubo: 5 mm. Capacidad total: 420 nF. . . . .	60
3.10	Emisión espontánea para distintas tensiones de descarga para la $\lambda = 3645.48 \text{ Å}$ , transición correspondiente al Xe VII: (a) V = 17 kV., (b) V = 12 kV; presión: 20 mTorr, corriente máxima: 1.6 kA, correspondiente al caso de menor tensión. Diámetro interno del tubo 5 mm, tensión total de descarga: 420 nF. . . . .	60

3.11	Emisión espontánea de la línea 4954.13 Å para diferentes corrientes: (a) 0.9 kA, (b) 1.1 kA, (c) 1.6 kA, (d) 2.1 kA. La corriente corresponde al último caso. Presión de llenado: 10 mTorr, diámetro interno del tubo: 3 mm; capacidad total 400 nF. . . . .	61
3.12	Retraso temporal observado para los distintos iones: (a) $\lambda = 5401.01$ Å (Xe III), (b) $\lambda = 3330.84$ Å (Xe V), (c) $\lambda = 3645.48$ Å (Xe VII), (d) $\lambda = 3510.42$ Å (Xe VIII); presión: 15 mTorr, corriente máxima 1.2 kA. Diámetro interno del tubo 5 mm., capacidad total 420 nF . . . .	62
3.13	Retraso en la aparición de la emisión para iones bajos. (a) $\lambda = 5313.74$ Å (Xe II), (b) $\lambda = 5332.01$ Å (Xe IV); p=5 mTorr, $I_{\max} = 1.5$ kA, capacidad total: 380 nF, $D_{tubo} = 3$ mm. . . . .	62
3.14	Emisión espontánea para distintos iones: (a) Xe III, (b) Xe V, (c) Xe VII; p = 15 mTorr, $I_{\max} = 1.4$ kA, $D_{tubo} = 3$ mm. Capacidad total: 140 nF . . . . .	63
3.15	Retraso en la aparición de la emisión láser para distintos iones: (a) $\lambda = 3803.26$ Å (Xe V), (b) $\lambda = 3645.48$ Å (Xe VII), (c) $\lambda = 3350.03$ Å (Xe VIII), (d) $\lambda = 3246.99$ Å (Xe VIII); p = 30 mTorr, $I_{\max} = 2$ kA, $D_{tubo} = 5$ mm, capacidad total: 420 nF. . . . .	66
3.16	Oscilaciones de la emisión láser para la transición 3350.03 Å (Xe VII); p= 12 mTorr, $I_{\max} = 1.8$ kA., $D_{tubo} = 5$ mm . . . . .	66
3.17	Dependencia de las oscilaciones de la emisión láser con la alineación para la $\lambda = 4954.13$ Å (Xe V); p = 10 mTorr, $I_{\max} = 1.2$ kA, $D_{tubo} = 3$ mm. Capacidad total: 380 nF. . . . .	67
3.18	Emisión láser cercana al umbral para la $\lambda = 5352.92$ Å (Xe V). $I_{\max} = 620$ A, p = 20 mTorr. $D_{tubo} = 3$ mm, capacidad total 380 nF. . . . .	67
3.19	Emisión espontánea y láser para la $\lambda = 3645.48$ Å (Xe VII). p = 10 mTorr, $I_{\max} = 1.6$ kA, $D_{tubo} = 5$ mm. Capacidad total: 420 nF. . . .	68
3.20	Emisión láser y espontánea para la $\lambda = 5352$ Å (Xe V), $I_{\max} = 700$ A, p=20 mTorr. $D_{tubo} = 3$ mm. . . . .	69
3.21	Distribución temporal de la emisión láser con su correspondiente espontáneo bien por encima del umbral. $\lambda = 4060.45$ Å (Xe III), p= 10 mtorr, $I_{\max} = 1.8$ kA, $D_{tubo} = 5$ mm. . . . .	70
3.22	Comportamiento superradiante observado para la transición 3645.48 Å (Xe VII). (a)Emisión con espejo reflector; (b)Emisión sin espejo reflector. p = 15 mTorr, $I_{\max} = 1.8$ kA, $D_{tubo} = 5$ mm. . . . .	71
3.23	Emisión cuasicontinua de la transición 3645.48 Å (Xe VII); p = 15 mTorr, $I_{\max} = 1.4$ kA, $D_{tubo} = 5$ mm. Capacidad total: 420 nF. . . . .	71
4.1	Cociente entre la densidad electrónica como función de la coordenada radial r, y la densidad promediada en el tubo, en función del tiempo. . . . .	83
4.2	Evolución temporal de la corriente y la densidad electrónica. . . . .	83

4.3	Probabilidad de transición calculada por recombinación: dielectrónica y colisional contra las paredes del tubo en función del tiempo. $T_e = 8 \times 10^4 K$ . . . . .	88
4.4	Densidad de electrones calculada y corriente de excitación para una $T_e$ máxima de $1.2 \times 10^5 K$ . . . . .	91
4.5	Evolución temporal de la densidad total de población por ion para $T_e = 10^5 K$ , presión de 20 mTorr; densidad inicial de átomos neutros: $10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . . . . .	92
4.6	Evolución temporal de la población total para cada ion para una $T_e = 5 \times 10^4 K$ , $p = 20 \text{ mTorr}$ ; densidad inicial de átomos neutros: $10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . . . . .	92
4.7	Evolución temporal calculada para distitos iones para: (a) Xe III, (b) Xe V, (c) Xe VII, $T_e = 10^5 K$ . . . . .	93
4.8	Comportamiento temporal de una transición perteneciente al Xe V con la tensión: (a) $T_e = 10^5 K$ , (b) $T_e = 7.5 \times 10^4 K$ . . . . .	95
4.9	Variación calculada de la emisión espontánea con la presión para una transición perteneciente al Xe V. (a) $p = 20 \text{ mTorr}$ , (b) $p = 40 \text{ mTorr}$ . . . . .	96
4.10	Intensidad normalizada de emisión para distintos iones en función de la presión.. . . .	97
4.11	Modelo simplificado de excitación de los niveles de energía del láser. Línea sólida: canales de decaimiento radiativo; línea punteada: procesos de recombinación; línea de rayas: procesos de excitación, desexcitación e ionización. . . . .	100
4.12	Comportamiento oscilatorio para la $\lambda = 3350.03 \text{ Å}$ (Xe VIII). . . . .	107
4.13	Oscilaciones de la emisión para distintas alineaciones variando el tiempo de vida de los fotones en la cavidad: (1) línea de rayas $\gamma_c = 10^7 \text{ s}^{-1}$ , (2) línea continua $\gamma_c = 10^8 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	108
4.14	Emisión estimulada cerca del umbral y espontáneo correspondiente para la transición $4954.13 \text{ Å}$ (Xe V); $T_e = 7.5 \times 10^4 K$ . . . . .	109
4.15	Evolución temporal de la transición $\lambda = 3645.48 \text{ Å}$ (Xe VII) espontánea y láser. $T_e = 9 \times 10^4 K$ . . . . .	110
4.16	Emisión láser y espontánea, correspondiente a la transición $3803.26 \text{ Å}$ (Xe V), bien por encima del umbral ( $T_e = 9 \times 10^4 K$ ). . . . .	110

# Lista de Tablas

3.1	Transiciones láser observadas correspondientes a distintos grados iónicos e intensidades espontáneas. (1) Corresponden a transiciones ya clasificadas pero reportadas como láser por primera vez a dichas transiciones. (*) Transiciones estudiadas temporalmente. . . . .	65
4.1	Parámetros de energía de las configuraciones $5s^25p^2$ , $5s^25p6p$ , $5s^25p4f$ y $5p^4$ pertenecientes al Xe V . . . . .	73
4.2	Niveles de energía y porcentaje de composición correspondientes a los niveles que dan lugar a la emisión láser del Xe V . . . . .	74
4.3	Probabilidad de transición $A_{32}$ , tiempos de vida del nivel superior $\tau_3$ e inferior $\tau_2$ calculados, para transiciones láser. . . . .	78
4.4	Variación de la densidad electrónica promediada transversalmente y en el centro del tubo. . . . .	82
4.5	Ganancia en pequeña señal medida y calculada de las transiciones láser más intensas observadas . . . . .	105

# Capítulo 1

## Introducción

### 1.1 Antecedentes

Las descargas capilares pulsadas han sido utilizadas extensivamente como fuentes de emisión láser y espontánea. En éstos dispositivos, una descarga de corriente de alta intensidad y tensión, es utilizada para generar un plasma altamente ionizado que presenta emisiones de líneas muy intensas las cuales cubren el espectro electromagnético desde el UV lejano al IR cercano.

Descargas de gases nobles fueron empleadas como medio activo en el desarrollo de láseres desde el comienzo de la década del 60, tanto en un modo continuo como pulsado [1-5]. Es posible citar varios trabajos sobre el tema, de los cuales los de Bridges y Chester [1, 2] son los más conspicuos, estudiándose no sólo la espectroscopía de los láseres iónicos sino también su posible implementación práctica. La emisión también fue utilizada para bombear láseres de colorantes en distintas configuraciones [6-10]. Los gases más estudiados respecto de su acción láser fueron el Ne, Kr, Ar y Xe. Entre ellos, el xenón es el más importante de los láseres iónicos pulsados debido a su gran número de transiciones de alta intensidad observadas en la región ultravioleta y visible, reportándose potencias picos del orden de 4 kW [11].

Dado que la emisión estimulada se produce en el plasma desde diversas especies iónicas, a fin de realizar un estudio profundo de sus propiedades es necesario: caracterizar al plasma, asignar iónicamente cada una de las transiciones involucradas, clasificar a dichos niveles y finalmente determinar las características y propiedades de

los niveles involucrados en los procesos de excitación.

A principio de la década del 70, aparecen dos trabajos de Papayoanou *et al.* [12, 13] en los que estudian concretamente las características del plasma en éste tipo de descargas. Midiendo la densidad electrónica y la conductividad, además de diversos parámetros macroscópicos realizaron una estimación de la temperatura electrónica. Proponen también que la acción láser ocurre durante la contracción dinámica de la columna del plasma (pinch).

De esa época datan los primeros trabajos con xenón de algunos de los actuales miembros del Centro de Investigaciones Ópticas. Estos fueron llevados a cabo, realizando un estudio sistemático de la información obtenida al descargar un banco de capacitores a través de un tubo capilar, y luego registrarlo en placas por medio de un espectrógrafo. La variación de la energía de descarga permitió conocer el estado de ionización correspondiente a cada una de las 2000 transiciones detectadas, incluyendo las correspondientes a las líneas láser [14-18]. Luego, la introducción de programas de cálculo teórico, permitió diagonalizar las matrices de energía y obtener diversos parámetros, con los que se logró una mejor comprensión de los resultados experimentales [19-22]. Sin embargo las líneas láser visibles-UV no pudieron ser clasificadas dentro de los esquemas de niveles de los iones estudiados.

Se han presentados diversos trabajos respecto a la asignación iónica de las especies. Marling [11] analiza la corriente a la cual cada transición alcanza su máximo de intensidad proponiendo que la emisión pertenecía fundamentalmente al Xe III y Xe IV. Varios trabajos posteriores presentaron conclusiones similares [23-25], asociando las transiciones correspondientes al visible como pertenecientes al Xe IV. Duchowicz *et al.* [26] reportan en 1994 los resultados de su análisis de la emisión espontánea, incluyendo las transiciones más importantes que emiten como láser. Basado en espectroscopía resuelta en tiempo y en un estudio de la variación de la intensidad de la emisión con la presión, dedujeron que la mayoría de las transiciones visibles pertenecen al Xe V, mientras que las más intensas en el UV, al Xe VII.

La distribución temporal de la salida láser, consiste en general de un único pulso dentro del ancho del pulso de corriente. Sin embargo, en 1966 Kobayashi *et al.* [27] muestran la obtención de un doble pulso temporal en un láser de Ar II

pulsado para las líneas 4880 Å y 4765 Å, donde la intensidad y separación de los mismos depende de la corriente y la presión. Cheo y Cooper [3], Hattori y Goto [4], y Sakuma y Tako [5], observaron doble pulso para láseres iónicos de Ar y Kr que atribuyeron a procesos de apagado (quenching) y saturación. Luego, Papayoanou [13], obtiene una distribución temporal consistente en dos pulsos para el láser de Xe, aunque no profundiza sobre el tema. En 1980, Sasaki *et al.* [28] observaron salida en doble pulso luego de excitar con un pulso de corriente de 100  $\mu$ s obtenido a través de una red formadora de pulsos de 10 etapas, cada uno de las cuales consistía en condensadores de 500 nF y una inductancia de 50  $\mu$ H. Estos autores atribuyen al primer pulso a una excitación directa (single-step) desde el estado fundamental del átomo neutro a los distintos niveles superiores láser del ion de Xe correspondiente, mientras que el segundo pulso fue propuesto como generado en un proceso de varias etapas. En el año 1984, Sampayo [29], observó en el Centro de Investigaciones Ópticas la existencia de doble pulso temporal en algunas líneas láser como así también el comportamiento espontáneo de otras tres, proponiendo un mecanismo de excitación por colisión entre iones en algún nivel metaestable, para explicar el mayor ancho de la emisión espontánea respecto de la corriente a presiones altas.

## 1.2 Resumen y objetivos

El objetivo del trabajo fue estudiar los mecanismos de excitación del plasma de xenón y de las características de la emisión producida en la región UV-visible, tanto espontánea como láser. Para ello se hizo uso de la espectroscopía resuelta en tiempo, espectroscopía atómica convencional y de modelos teóricos para analizar su funcionamiento.

En una primera etapa se realizó un estudio resuelto en tiempo de la emisión, para las líneas más intensas de las casi 30 transiciones láser observadas en la región 2000-6000 Å. Este incluyó la búsqueda de nuevas líneas y el estudio sistemático de las características temporales en función de los distintos parámetros experimentales: presión de llenado del tubo, tensión de descarga, capacidad total, distintos diámetros del tubo, distintas alineaciones, etc. Estos resultados se interpretaron por medio de



un modelo simple de ecuaciones de balance de las poblaciones de los niveles involucrados y la que describe el número de fotones en la cavidad. Dada la imposibilidad de avanzar más sobre un modelo teórico sin conocer cuáles eran las transiciones involucradas y qué características tenían, se decidió estudiar la emisión del xenón por medio de espectroscopía de emisión. Se consiguió clasificar a 13 transiciones láser como pertenecientes al Xe V, en acuerdo con asignación iónica realizada en nuestro laboratorio por Duchowicz.

Por otra parte, se realizó un estudio teórico y experimental de la emisión espontánea para cada una de las especies iónicas observadas (Xe II al Xe IX). Se incluyeron medidas en función de los parámetros experimentales mencionados, para un número de transiciones cercano a cien pertenecientes a distintos grados iónicos. El modelo de la emisión del plasma tuvo en cuenta éstos resultados, como así también los de otros autores, para la estimación de algunos parámetros de la descarga. Los cálculos incluyeron los principales mecanismos involucrados en la excitación y desexcitación del plasma lográndose reproducir los principales resultados obtenidos.

Se hizo uso de cálculos del tipo Hartree-Fock relativistas a fin de determinar parámetros característicos de las transiciones láser: tiempos de vida y probabilidad de transición, así como las intensidades de oscilador de los niveles más importantes que interactúan con aquellos que dan lugar a la emisión estimulada. Los resultados de éstos cálculos fueron incluidos en el modelo anterior, junto con los términos que dan lugar a la emisión láser. La solución permitió determinar los principales mecanismos y niveles desde dónde se bombea para producir la inversión de población. Se calculó la ganancia de las transiciones láser con un muy buen acuerdo con las medidas realizadas en éste trabajo. Finalmente, un análisis teórico y experimental por medio de espectroscopía resuelta en tiempo de la emisión del láser y del espontáneo, permitió comprender los distintos fenómenos observados y predecir las condiciones óptimas de descarga para optimizar la potencia del láser para cada transición o para operar el láser en forma cuasi-continua.

En el Capítulo II se realiza una introducción teórica dónde se detallan los programas de cálculo utilizados, se describen los principales mecanismos que tienen lugar en la dinámica de plasmas y se describen los fundamentos de la teoría del láser

que se utilizan luego para analizar la emisión. En el Capítulo III se describe el instrumental empleado y los procedimientos experimentales. Se presentan los principales resultados obtenidos por medio del análisis temporal tanto de la emisión láser como espontánea. En el Capítulo IV se explican los procedimientos de cálculo utilizados para obtener los distintos parámetros espectroscópicos y clasificar las transiciones pertenecientes al Xe V que dan lugar a la emisión láser. Se describen los principales mecanismos de ensanchamiento de las líneas incluyéndose una estimación del mismo. Se analizan los procesos atómicos que se dan lugar en el plasma, junto con el modelo teórico aplicado a nuestro caso y las predicciones del mismo. Luego por medio de ecuaciones de balance para un sistema de funcionamiento de cuatro niveles se analizan las predicciones teóricas respecto de la distribución temporal de la emisión del láser, junto con las medidas y los cálculos realizados para la ganancia correspondiente a las transiciones más intensas. Finalmente en el Capítulo V se exponen las conclusiones generales y las posibles aplicaciones de los resultados obtenidos.

Durante el desarrollo de ésta tesis, los resultados obtenidos se enviaron a 7 comunicaciones a congresos, y las siguientes publicaciones:

1. "Estudio de la salida multipulso de un láser iónico de xenón".

D. Schinca, H. Sobral, R. Duchowicz, y M. Gallardo.

Anales de la Asociación Física Argentina 1994.

2. "Gain switching and oscillations in a ionic pulsed xenon laser".

H. Sobral, D Schinca, R Duchowicz and M. Gallardo.

JEOS - Pure and Applied Optics A Vol. 5, N° 6, 1011-1020, 1996.

3. "The Vacuum Ultra Violet (VUV) Spectrum of Six Times Ionized Xenon, Xe VII".

G. H. Cavalcanti, F. Luna, A. Trigueiros, F. Bredice, H. Sobral, R. Hutton and M. Wang.

Journal of the Optical Society of America B, Vol. 14, N° 10, 2459-2462, 1997.

4. "Revised and extended analysis in four times ionized xenon Xe V".

M. Gallardo, M. Raineri, J. Reyna Almandos, H. Sobral and F. Callegari.

Journal of Quantitative and Radiative Transfer, Vol. 61, N° 3, 319-327, 1998.

5. "Time Dependent Collisional-Radiative Study of a Multi-Ionic Xenon Plasma".

H. Sobral, D. Schinca, M. Gallardo and R. Duchowicz.

Journal of Applied Physics, Vol. 85 N° 1, 69-73, 1999.

6. "Excitation Mechanisms and Parameters Determination of a Multi-Ionic Xenon Laser".

H. Sobral, M. Raineri, D. Schinca, M. Gallardo, and R. Duchowicz.

IEEE Journal of Quantum Electronics, enviado para publicar.

# Capítulo 2

## Fundamentos Teóricos

Se exponen aquí los principales elementos utilizados en el cálculo teórico de los parámetros espectroscópicos, los procesos que tienen lugar en el plasma y los principios de funcionamiento del láser.

### 2.1 Elementos de espectroscopía atómica

Se describirán los métodos aproximados para el cálculo de transiciones dipolares eléctricas y los programas de cálculo utilizados. Se analizarán también las principales causas del ensanchamiento de las líneas en espectroscopía de plasmas.

#### 2.1.1 Transiciones radiativas

##### Probabilidades de transición e intensidades de oscilador

A efectos de conocer las diferentes tasas de excitación y desexcitación, como así también la determinación de la ganancia de las distintas transiciones láser, se hace relevante el cálculo de las probabilidades de transición espontánea  $A_{ij}$ , o cantidades relacionadas a la misma como las intensidades de oscilador  $f_{ij}$ .

La interacción de un átomo con una onda plana, se expresa matemáticamente a través del elemento de matriz [30]

$$H' = -(e/mc)\mathbf{p}\mathbf{A} \quad (2.1)$$

## 2.1. Elementos de espectroscopía atómica

donde  $e$ ,  $m$  y  $\mathbf{p}$  son la carga, la masa y el momento del electrón, y  $\mathbf{A}$  el vector de potencial. La probabilidad de transición entre los autoestados  $|\gamma\rangle \rightarrow |\gamma'\rangle$ , para la emisión de un fotón viene dado por la teoría de perturbaciones. La probabilidad de radiación de un fotón polarizado en la dirección  $\hat{\mathcal{E}}_{kp}$  en el elemento de ángulo sólido  $d\Omega$  es:

$$dW_p = \left( e^2 \omega / 2\pi \hbar c^3 m^2 \right) \left| \hat{\mathcal{E}}_{kp} \langle \gamma | p e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} | \gamma' \rangle \right|^2 (\tilde{n}_{kp} + 1) d\Omega \quad (2.2)$$

donde  $\tilde{n}_{kp}$  es el número medio de fotones en una dada polarización en el intervalo  $\mathbf{k}$ ,  $\mathbf{k}+d\mathbf{k}$  y  $\omega$  es la frecuencia de la transición. En el caso de la aproximación dipolar (cuando la longitud de onda es mucho mayor que las dimensiones del átomo),  $\mathbf{k}\mathbf{r} \ll 1$  y  $\exp(i\mathbf{k}\mathbf{r}) \simeq 1$  tenemos:

$$\langle \gamma | \mathbf{p} \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r}) | \gamma' \rangle \simeq m \langle \gamma | \mathbf{v} | \gamma' \rangle = -i\omega \langle \gamma | \mathbf{r} | \gamma' \rangle \quad (2.3)$$

Finalmente integrando sobre el ángulo sólido  $d\Omega$  y sumando sobre las 2 direcciones de polarización obtenemos:

$$W_{\gamma\gamma'} = \left( 64\pi^4 \sigma^3 / 3h \right) \sum_q \left| \langle \gamma J M | P_q | \gamma' J' M' \rangle \right|^2 \quad (2.4)$$

donde  $P_q$  es la  $q$ -ésima componente del momento dipolar del átomo,  $h$  la constante de Planck y  $\sigma$  es el número de onda que satisface:  $\sigma = \lambda^{-1} = \nu/c$ .

Aplicando el teorema de Wigner-Eckart [31] al elemento de matriz de la expresión (2.4) obtenemos para la probabilidad de transición:

$$W_{\gamma\gamma'} = a_{\gamma\gamma'} = \left( 64\pi^4 \sigma^3 / 3h \right) S \sum_q \begin{bmatrix} J & 1 & J' \\ -M & q & M' \end{bmatrix} \quad (2.5)$$

donde  $J'$  es el momento total angular y  $M'$  el número cuántico magnético. La suma se realiza según las reglas para los símbolos 3-j [31], obteniéndose para la probabilidad total de transición desde un estado excitado  $|\gamma' J' M'\rangle$  a todos los estados  $M$  del nivel  $|\gamma J\rangle$ :

$$A = \frac{64\pi^4 e^2 a_0^2 \sigma^3}{3h(2J' + 1)} S \quad [\text{s}^{-1}] \quad (2.6)$$

siendo  $a_0$  es el radio de Bohr y  $S$  es la fuerza de línea que viene dada por:

$$S = \left| \langle \gamma J || \mathbf{P} || \gamma' J' \rangle \right|^2 \quad (2.7)$$

## 2.1. Elementos de espectroscopía atómica

Para el estudio de la interacción de la radiación con la materia se usa habitualmente una cantidad adimensional denominada intensidad de oscilador  $f$ , que se relaciona con  $A$  por medio de la siguiente expresión [32]:

$$A = 0.667\sigma^2 f \quad [\text{s}^{-1}] \quad (2.8)$$

cuando  $\sigma$  se mide en kaisers ( $\text{cm}^{-1}$ ).

La experiencia muestra que los elementos de matriz, son muy sensible con autofunciones que describen a los estados  $|\gamma J\rangle$  [33], por lo que para mejorar el resultado obtenido para el cálculo de las intensidades de oscilador  $f$ , es necesario realizar un buen ajuste de los niveles teóricos a los obtenidos experimentalmente por medio de cálculos numéricos del tipo Hartree-Fock.

### 2.1.2 Cálculos numéricos

A través de los códigos computacionales [34] implementados en el CIOp, pueden calcularse los niveles de energía y todos sus parámetros. También es posible determinar los tiempos de vida, probabilidad de transición e intensidad de oscilador, para luego incluirlos en el análisis posterior de los procesos fundamentales de excitación del plasma y de la emisión láser. Estos códigos son:

1. **RCN33.** Este código posee una tabla de entrada con varias opciones de cálculo como ser Hartree-Fock (HF), modelo estadístico (HX), y otros; se puede también realizar cálculos relativistas (HFR, HXR) incluyendo la interacción spin-órbita, e incluir la interacción de Breit. Este programa, una vez introducidas las configuraciones, realiza el cálculo de las funciones de onda radiales de cada configuración para un átomo esféricamente simétrico ( $E_{av}$ ); éstas las utiliza para calcular las integrales de Coulomb ( $F^k$ ), de intercambio ( $G^k$ ), integrales radiales spin-órbita ( $\zeta_{nl}$ ), e integrales de dipolo eléctrico.
2. **RCN2.** Posee en su carta de entrada opciones para el escalonamiento de los parámetros spin-órbita e integrales radiales, así como la posibilidad de corregir al nivel fundamental. Este programa ajusta las funciones de onda radiales

## 2.1. Elementos de espectroscopía atómica

del programa RCN33. Calcula las integrales de Coulomb de interacción entre configuraciones ( $R^k$ ), las integrales de spin-órbita  $\zeta_{nl'n''}$ , y automáticamente computa todas las cantidades requeridas para calcular los niveles de energía y espectro de un átomo.

3. **RCG10.** Este código tiene como finalidad el de calcular los factores angulares de varios elementos de matriz del espectro y estructura atómica. Utiliza el álgebra de Racah [35] y necesita como entrada los coeficientes de parentesco fraccionario para cada subcapa. Estos factores angulares son: la energía promedio de cada configuración  $E_{av}$ , los coeficientes  $f_k$  y  $g_k$  de las integrales de Coulomb y de intercambio, los coeficientes  $r_d^k$  y  $r_e^k$  de las integrales radiales, los coeficientes angulares de los elementos de matriz reducida de dipolo eléctrico, y algunos coeficientes angulares de ciertos operadores de interacción de Coulomb efectivo:  $\alpha, \beta, \gamma$ .
4. **RCE19.** Este programa por medio de los coeficientes obtenidos de RCN2 y RCG10 tiene como función principal realizar el ajuste por cuadrados mínimos de los niveles de energía obtenidos experimentalmente. Este ajuste es conseguido por medio de la optimización de los parámetros de Slater. Si definimos a la desviación standard  $S$  como:

$$S = \left[ \frac{\sum_n \{E^n - T^n\}^2}{N_n - N_p} \right]^{1/2} \quad (2.9)$$

donde:  $T^n$  son los niveles observados,  $E^n$  son los autovalores calculados,  $N_n$  es el número de niveles de ajuste,  $N_p$  es el número de parámetros ajustables incluidos en el ajuste y  $\Delta E$  es el salto de energía entre 2 niveles, una precisión de ajuste es considerada como buena cuando la razón entre  $S$  y  $\Delta E$  es inferior al 1 %.

### 2.1.3 Ancho de línea

Las líneas espectrales tanto de emisión como absorción son ensanchadas y corridas espectralmente por diversos motivos: el principio de incerteza, el efecto

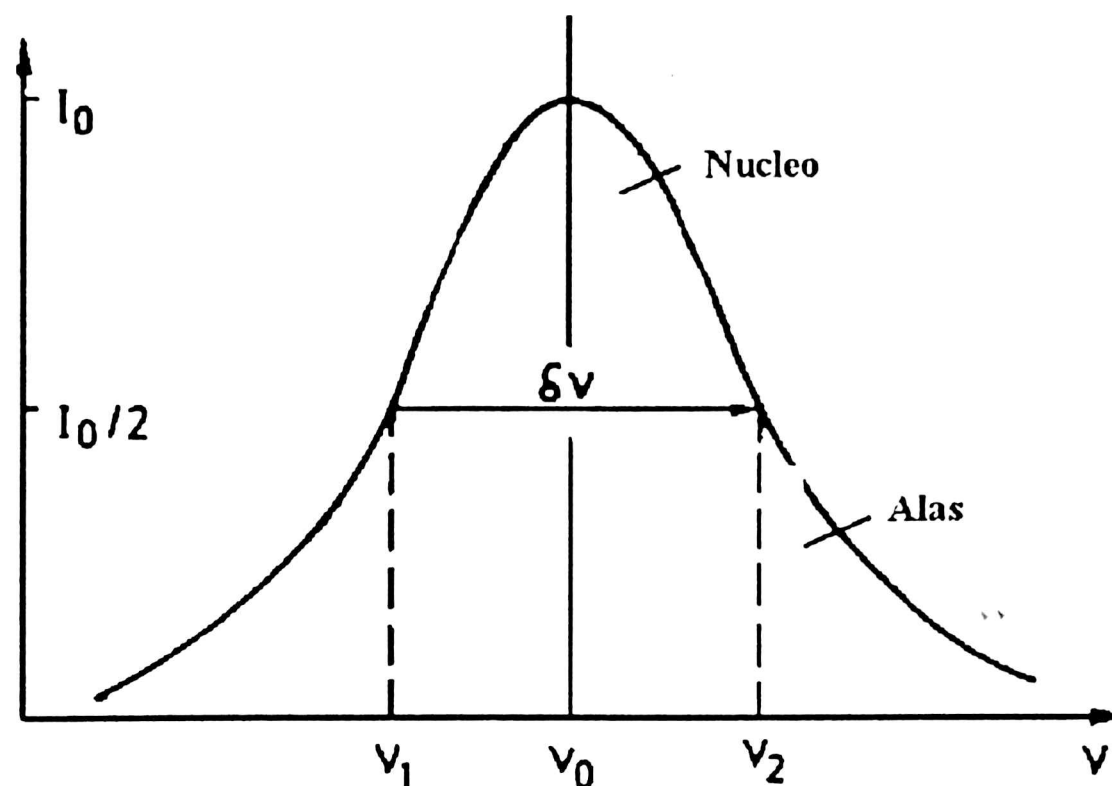


Figura 2.1: Perfil de línea de una transición:  $\delta\nu$ : ancho de línea (FWHM)

Doppler, colisiones, etc. La función  $I(\nu)$  (ver Figura 2.1) centrado alrededor de  $\nu$  se la denomina perfil de línea y al intervalo  $\delta\nu = |\nu_2 - \nu_1|$  que es el ancho medido a la altura media de ésta función (FWHM), se lo denomina ancho de línea.

### Ancho de línea natural

Seguiremos a la teoría electromagnética clásica [36], para describir el comportamiento de un átomo excitado que emite radiación espontánea. Haremos uso de la solución a la ecuación diferencial para el oscilador armónico amortiguado de frecuencia angular  $\omega$ , masa  $m$ , constante de restitución  $D$  y constante de amortiguamiento  $\gamma$ . Si  $\omega_0 = D/m$ , el perfil de intensidad de la línea estará dado por:

$$I(\omega - \omega_0) = \frac{I_0}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \quad (2.10)$$

Finalmente, reemplazando la constante de amortiguamiento  $\gamma$ , por la probabilidad de emisión espontánea  $A_i$  obtenemos para el ancho de línea:

$$\delta\nu_n = A_i/2\pi = 1/(2\pi\tau_i) \quad (2.11)$$

donde  $\tau_i$  es el tiempo de vida del nivel.

Esta última expresión puede derivarse fácilmente a partir del principio de incerteza [37]. Un nivel excitado  $E_i$  con un tiempo de vida  $\tau_i$  tiene un nivel de energía



## 2.1. Elementos de espectroscopía atómica

que puede determinarse con una incerteza  $\Delta E_i \approx \hbar/\tau_i$ , con  $\hbar$  la constante de Planck sobre  $2\pi$ . Si éste nivel realiza una transición hacia un nivel estable  $E_j$ , entonces la frecuencia de emisión:  $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$ , tendrá una incerteza:

$$\delta\omega = \Delta E_i/\hbar = 1/\tau_i \quad (2.12)$$

En caso que el nivel  $E_k$  no sea el fundamental, deberemos incluir su contribución al ensanchamiento de línea. En éste caso tendremos:

$$\Delta E = \Delta E_i + \Delta E_k \rightarrow \delta\omega_n = (1/\tau_i + 1/\tau_k) \quad (2.13)$$

En general, para descargas en gases a baja presión el ancho natural es mucho menor que las contribuciones al ensanchamiento de la línea debidas a otras contribuciones que veremos a continuación.

### Ensanchamiento por efecto Doppler

Es debido al movimiento térmico de los átomos, iones o moléculas, que emiten o absorben radiación electromagnética. El análisis es el mismo que es usado en mecánica clásica. Supongamos que un átomo está emitiendo con una frecuencia central  $\omega_0$ . Según sea su movimiento respecto al detector (observador), la frecuencia sufrirá un desplazamiento dado por [37]:

$$\omega = \omega_0 + \mathbf{k}\mathbf{v} = \omega_0(1 + v/c) \quad (2.14)$$

donde hemos supuesto que el átomo se mueve en dirección a la fuente con una velocidad  $\mathbf{v}$ . Suponiendo que el gas está en equilibrio térmico, las partículas tendrán una distribución de velocidades maxwelliana. En ese caso la densidad de partículas  $n_i(v)$  en el nivel  $E_i$ , a una temperatura  $T$  y con una velocidad alrededor de un entorno de  $v$  será:

$$n_i(v)dv = \frac{N_i}{v_p} \exp \left[ -(v/v_p)^2 \right] dv \quad (2.15)$$

donde  $v_p = (2kT/m)^{1/2}$  es la velocidad más probable (con  $k$  la constante de Boltzman) y  $N_i$  es el número total de partículas en el nivel  $E_i$ . Dado que la potencia radiada es

## 2.1. Elementos de espectroscopía atómica

proporcional a  $n_i$ , reemplazando (2.14) en (2.15) obtenemos para  $I(\omega)$ :

$$I(\omega) = I_0 \exp \left[ -\frac{c(\omega - \omega_0)}{\omega_0 v_p} \right]^2 \quad (2.16)$$

Este es un perfil de línea gaussiano donde el ancho de línea estará dado por:

$$\delta\omega_D = \frac{\omega_0}{c} (8kT_{ion}/m)^{1/2} \quad (2.17)$$

donde  $T_{ion}$  es la temperatura iónica, y  $m$  la masa de las partículas.

Finalmente el ancho de línea relativo  $\Delta\lambda/\lambda$  puede ser escrito de la siguiente forma [38]:

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{2(2\ln 2)^{1/2}}{c} \left( \frac{T_{ion}}{m} \right)^{1/2} \quad (2.18)$$

donde  $c$  es la velocidad de la luz,  $T_{ion}$  es la temperatura de los iones y  $m$  su masa.

### Ensanchamiento por colisiones

Cuando dos átomos se acercan mutuamente, sus niveles de energía son modificados por la interacción que ocurren entre los mismos. Esta interacción depende de la distancia entre los centros de masa y de la configuración electrónica particular de los átomos interactuantes. Si no hay transferencia de energía interna durante la colisión por transiciones no radiativas, la dispersión se denomina elástica, y si la hay, inelástica. Estas últimas son también denominadas colisiones de apagado (quenching), dado que reduce en número de átomos excitados de forma no radiativa.

La probabilidad de transición total  $A_i$  de un átomo o ion es la suma de los términos debido al despoblamiento del nivel  $E_i$  en forma radiativa y no radiativa (inducida por colisiones) [37]:

$$A_i^{effect} = \sum_k A_{ik} + ap \quad (2.19)$$

donde  $p$  es la presión y  $a$  es la probabilidad de transición por colisiones dada por:

$$a = \sigma_{ik} \frac{(2kT)^{3/2}}{(\pi\mu)^{1/2}} \quad (2.20)$$

siendo  $\mu$  la masa reducida del sistema y  $\sigma_{ik}$  la sección eficaz de colisión.

## 2.1. Elementos de espectroscopía atómica

Esta dependencia de la probabilidad de transición total con la presión causa un ensanchamiento adicional de la línea que se representa por la siguiente suma de términos:

$$\delta\omega = \delta\omega_n + \delta\omega_{col} = \gamma_n + \gamma_{col} \quad (2.21)$$

Tanto las colisiones elásticas como inelásticas producen ensanchamiento en las líneas. Baranger [39] obtuvo una expresión para el cálculo del ensanchamiento por colisiones; el cálculo requiere un gran número de datos teóricos (secciones eficaces) no disponibles, por lo que es necesario contar con una expresión que permita estimar dichos anchos correctamente. Para ello haremos uso de una expresión semiempírica propuesta por Griem [40] que realiza una serie de aproximaciones para realizar el cálculo. El ensanchamiento es debido a la interacción de los átomos o iones con electrones fundamentalmente. Suponiendo que éstos tienen una distribución de energía maxwelliana, entonces el ancho de línea en unidades de frecuencia angular estará dado por:

$$\omega_{se} \approx 2 \times \sum_{i,f} \left[ \langle i | r^2 | i \rangle g_{se} \left( \frac{3kT_e}{2|\Delta E_i|} \right) + \langle f | r^2 | f \rangle g_{se} \left( \frac{3kT_e}{2|\Delta E_f|} \right) \right] * \\ 8 \left\{ \frac{\pi}{3} \right\}^{3/2} \frac{\hbar}{ma_o} n_e \left\{ \frac{E_H}{kT_e} \right\}^{1/2} \quad (2.22)$$

donde  $\Delta E_i$  es el salto de energía entre el nivel ensanchado y aquellos con los que interactúa  $E_i$ ,  $n_e$  es la densidad electrónica,  $E_H$  es la energía de ionización del hidrógeno (13.6 eV),  $T_e$  es la temperatura electrónica,  $m$  es la masa del electrón,  $a_o$  el radio de Bohr,  $k$  la constante de Boltzman, y  $g_{se}$  es el factor de Gaunt efectivo que puede tomarse a partir de [41], pero como referencia puede tomarse como: 0.3.

Los elementos de matriz  $\langle i | r^2 | i \rangle$  pueden estimarse a partir de la siguiente expresión [40]:

$$\langle i | r^2 | i \rangle = \frac{n_i^2}{2(z+1)^2} [5n_i^2 + 1 - 3l_i(l_i + 1)] a_o^2 \quad (2.23)$$

en la que  $z$  es el grado iónico (en notación espectroscópica) y  $n_i$  el número cuántico principal efectivo. Siguiendo a Griem éste último puede calcularse por medio de:

$$n_i^2 = (z+1)^2 E_H / (I - E_I) \quad (2.24)$$

donde  $E_I$  e  $I$  son las energías de excitación e ionización respectivamente del átomo o ion.

## 2.2 Procesos atómicos en plasmas

### 2.2.1 Introducción

Consideraremos que un plasma es un gas ionizado con concentraciones elevadas de partículas cargadas. En general éstos se caracterizan por varias temperaturas: la temperatura electrónica  $T_e$  y la temperatura iónica  $T_i$ , asociadas a la energía cinética de los electrones e iones en el gas respectivamente, la temperatura de radiación  $T_r$ , que caracteriza la densidad de energía del campo de radiación, entre otras.

En los plasmas en equilibrio termodinámico completo, todas las temperaturas son iguales. En aquellos con equilibrio termodinámico local la temperatura electrónica e iónica coinciden en volúmenes pequeños mientras que los que están fuera éste equilibrio en general  $T_e > T_i$ . Muchos de los fenómenos interesantes en física, ocurren en situaciones fuera del equilibrio. En particular, para los láseres de gases nobles ionizados la temperatura electrónica es mucho mayor que la iónica [13], [32].

### 2.2.2 Procesos de excitación y desexcitación

Usualmente los electrones son los principales responsables de los procesos de excitación e ionización en plasmas [42]. La interacción entre las partículas más pesadas (protones, iones), es importante solamente para las transiciones entre niveles con poca separación energética. Los procesos principales que ocurren dentro del plasma son los que se describen a continuación.

Excitación y desexcitación:



donde  $z$  denota la carga del átomo o ion  $Z$ , sin el electrón óptico (notación espectroscópica).

Ionización y recombinación de tres cuerpos:



Ionización radiativa y recombinación:



Recombinación dielectrónica y autoionización:



Emisión y absorción de una línea espectral:



Como se puede ver para cada proceso existe un proceso inverso y que pueden relacionarse entre si por relaciones simples a través de la sección eficaz correspondiente a cada uno.

## Equilibrio termodinámico

En caso que el plasma se encuentre en equilibrio termodinámico, las siguientes distribuciones deberán ser válidas:

- 1 La distribución de la energía de los electrones  $f(\mathcal{E})$ , será maxwelliana:

$$f(\mathcal{E}) = 2\pi^{-1/2} T_e^{-3/2} \mathcal{E}^{1/2} \exp(-\mathcal{E}/T_e) \quad (2.30)$$

donde la temperatura electrónica  $T_e$  está expresada en unidades de energía (1 eV = 11605 K = 8066 cm<sup>-1</sup>).

- 2 La distribución de las poblaciones  $N_k$ , sobre los distintos niveles de energía  $E_k$ , deberá ser de la de Boltzman:

$$\frac{N_k}{N_1} = \frac{g_k}{g_1} \exp(-\beta_{k1}) \quad (2.31)$$

donde  $\beta_{k1} = (E_k - E_1)/T_e$ , y  $g_i$  es el peso estadístico del nivel  $i$ .

3 Deberá satisfacerse la distribución de Saha sobre los distintos grados de ionización.

$$\frac{N^{z+1}}{N^z} = \frac{g_{z+1}}{g_z} 2 \left[ \frac{mT_e}{2\pi\hbar^2} \right]^{3/2} n_e^{-1} \exp(-E_z/T_e) \quad (2.32)$$

donde  $E_z$ , es la energía de ionización del átomo,  $m$  es la masa del electrón y  $g_z$  es la función de partición, dada por:

$$g_z = \sum_k g_k^z \exp(-\beta_{k1}) \quad (2.33)$$

De hecho,  $\beta_{k1} \gg 1$  para todos los niveles cuyo número cuántico principal sea distinto al del nivel fundamental.

### La sección eficaz; frecuencias colisionales

La sección eficaz es un parámetro que permite describir las interacciones entre las partículas. Su nombre se toma de la analogía con la colisión entre esferas rígidas. Si con  $p$  indicamos al proyectil y con  $b$  al blanco. El número de colisiones por unidad de tiempo y por unidad de volumen en el elemento de ángulo sólido  $d\Omega$  se escribe [43]:

$$dq_{pb} = n_p n_b v \sigma_{pb}(\theta, v) \mathcal{F}_{pb} dv d\Omega \quad (2.34)$$

donde  $n$  indica las densidades de las partículas,  $\sigma_{pb}(\theta, v)$  es la sección eficaz de dispersión para un ángulo  $\theta$ ,  $\mathcal{F}_{pb}$  es la función de distribución de velocidades relativas entre las partículas. Integrando sobre el ángulo sólido:

$$dQ_{pb} = n_p n_b v \sigma_{pb} \mathcal{F}_{pb} dv \quad (2.35)$$

donde:

$$\sigma_{pb} = \int \sigma_{pb}(\theta) d\Omega \quad (2.36)$$

es la sección eficaz total de dispersión.

Si hacemos la suposición que la distribución de velocidades es maxwelliana, obtenemos que la frecuencia de colisión para el choque de un electrón con los iones es [44]:

$$\nu_e = n_i \sigma_e v_{re} \quad (2.37)$$

siendo  $n_i$  la densidad de iones o "blanco" y  $v_{r_e}$  la velocidad de los electrones.

Análogamente obtenemos para la frecuencia de colisiones entre iones:

$$\nu_i = 4\sqrt{2}n_i\sigma_i v_r \quad (2.38)$$

donde  $v_{r_i}$  es la velocidad de los iones.

La velocidad  $v_r$  se expresa como:

$$v_r = 1.22v_m \quad (2.39)$$

con  $v_m$  la velocidad más probable de las partículas. Dada la temperatura iónica del sistema, tanto los átomos como los iones poseen una velocidad en equilibrio determinada por la expresión para la distribución de Maxwell (2.30). Entonces la  $v_r$  puede escribirse como:

$$v_r = \left( \frac{3kT_i}{m} \right)^{1/2} \quad (2.40)$$

donde  $T$  es la temperatura de los iones en  $K$  y  $m$  su masa.

### Relaciones entre la tasas de procesos directos e inversos

En equilibrio termodinámico, el principio de balance detallado es válido para cada par de procesos colisionales. La tasa de excitación del nivel  $j$  al nivel  $k$  ( $jk$ ), será igual a la tasa de desexcitación [42]:

$$N_j n_e \langle v \sigma_{jk} \rangle = N_k n_e \langle v \sigma_{kj} \rangle \quad (2.41)$$

y usando la ecuación (2.31) obtenemos:

$$g_j \langle v \sigma_{jk} \rangle = g_k \langle v \sigma_{kj} \rangle \exp(-\beta_{kj}) \quad (2.42)$$

Análogamente para el caso de ionización tenemos:

$$g_z \langle v \sigma_i \rangle = 2 \left( \frac{mT_e}{2\pi\hbar^2} \right)^{3/2} g_{z+1} \kappa_r \exp(-\beta_z) \quad (2.43)$$

donde  $\kappa_r$  es el coeficiente de la tasa de recombinación para 3 cuerpos y  $\beta_z$  es el cociente entre la energía de ionización y la temperatura del gas.

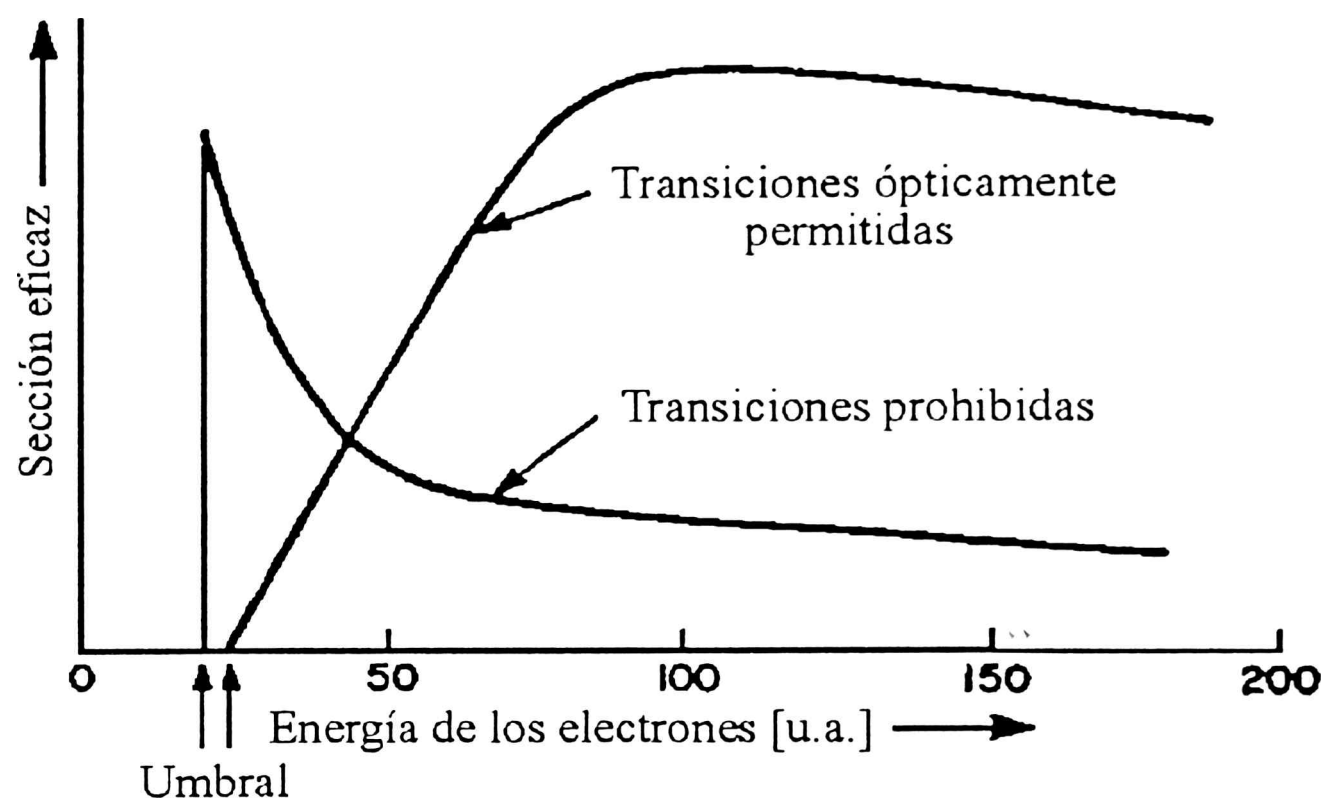


Figura 2.2: Gráfico cualitativo de la sección eficaz de excitación para transiciones permitidas y prohibidas.

Notemos que las expresiones (2.42) y (2.43) no incluyen las poblaciones de los niveles y en consecuencia no dependen de la existencia de equilibrio termodinámico para éstas; sólo es necesario que los electrones tengan una distribución de energías maxwelliana.

### Excitación por impacto electrónico directo

Las colisiones por impacto electrónico directo son los mecanismos más usuales de excitación en descargas gaseosas; pueden ser elásticas o inelásticas. La sección eficaz de la excitación del estado 1 al 2, usando la aproximación de Born [45] es:

$$\sigma_{12} \propto \int_{k_{\min}}^{k_{\max}} |\Psi_1 \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r}) \Psi_2^* d\tau|^2 k dk \quad (2.44)$$

donde  $\mathbf{k}$  es el vector de propagación para el electrón incidente, y  $\Psi_i$  son las funciones de onda. Si la energía de los electrones es mucho mayor que la energía de excitación, entonces la sección eficaz toma la forma:

$$\sigma_{12} \propto \left| \int \Psi_1 \Psi_2^* \mathbf{r} d\tau \right|^2 \quad (2.45)$$

El segundo término es proporcional al elemento de matriz dipolar para una transición



radiativa. Entonces, si despreciamos los términos de intercambio, la sección eficaz es proporcional a  $A_{21}$ . Es decir que las secciones eficaces más grandes se obtienen para transiciones ópticas fuertes. En general, la sección eficaz para transiciones prohibidas tiene valores apreciables únicamente en un rango muy pequeño de energías (Figura 2.2), justo encima de la energía umbral de excitación, mientras que las ópticamente permitidas, lo son en un rango mucho mayor [44].

### 2.2.3 Modelos de plasma

Usualmente tres tipos de modelos deben ser considerados según sea su densidad electrónica [42]. A densidades electrónicas ( $n_e$ ) bajas del orden de  $10^8 - 10^9 \text{ cm}^{-3}$ , se satisface que:  $n_e \ll A_k \langle v\sigma_{jk} \rangle$ . Este es el denominado límite de corona que es en general mucho más bajo que las condiciones de laboratorio usuales. A densidades altas, el plasma se encuentra en equilibrio termodinámico y valen las ecuaciones vistas más arriba. Para densidades electrónicas intermedias, la solución general para determinar las poblaciones de los distintos niveles, es muy difícil puesto que debe considerar un número muy grande de ecuaciones que incluyan todos los procesos y niveles [42]. Aun en éstos casos la distribución de energías de los electrones será maxwelliana y las ecuaciones (2.42) y (2.43) serán válidas, sin embargo las ecuaciones (2.31) y (2.32) dejarán de serlo. Los procesos que deben de tomarse en cuenta serán: excitación-desexcitación, ionización-recombinación y decaimiento espontáneo radiativo.

Por otro lado, dado que la existencia de equilibrio termodinámico total es muy difícil de satisfacer, muchos plasmas pueden describirse por el criterio de equilibrio termodinámico local (LTE) y el criterio que los procesos colisionales sean más importantes que los radiativos [32]. En ese caso valen las relaciones de Boltzman y Saha para los estados excitados.

Si  $N_1 n_e \langle v\sigma_{12} \rangle$  es la tasa de excitación por colisiones desde el nivel 1 al 2 y  $N_2 n_e \langle v\sigma_{21} \rangle$  es la de desexcitación de este último por colisiones, y si además decae radiativamente con una tasa  $N_2 A_{21}$ , en equilibrio se satisface:

$$N_1 N_e \langle v\sigma_{12} \rangle = N_2 n_e \langle v\sigma_{21} \rangle + N_2 A_{21} \quad (2.46)$$

Para procesos dominados por colisiones, la tasa radiativa será despreciable, es decir:

$$n_e \gg A_{21} / \langle v\sigma_{21} \rangle \quad (2.47)$$

Entonces para tener todos los niveles en equilibrio deberá satisfacerse [46]:

$$n_e \geq 9 * 10^{17} (E_2/R_y)^3 (kT/R_y)^{1/2} \quad (2.48)$$

Esta condición es en general difícil de satisfacerse, sin embargo la condición para equilibrio termodinámico local puede ponerse de la siguiente forma [47]:

$$n_e \gg 1.6 * 10^{12} T^{1/2} \Delta E \text{ [cm}^{-3}] \quad (2.49)$$

donde  $\Delta E$  es el salto de energía correspondiente a la transición analizada medida en eV y  $T$  es la temperatura del plasma en  $K$ .

## 2.2.4 Coeficientes para las distintas tasas

A fin de poder calcular las poblaciones de los distintos estados excitados de los iones y su evolución temporal, es necesario conocer los coeficientes de las tasas involucradas en los procesos de nuestro plasma; se hizo la suposición que los electrones tienen una distribución de energías maxwelliana.

### Excitación y desexcitación

Si denotamos con 0 al nivel inicial y con 1 al final, el coeficiente de la tasa de excitación  $\langle v\sigma_{01} \rangle$ , estará dada por [42]:

$$\langle v\sigma_{01} \rangle = \int_{\Delta E}^{\infty} v\sigma_{01} \mathcal{F}(\mathcal{E}) d\mathcal{E} \quad (2.50)$$

donde  $\mathcal{F}(\mathcal{E})$  es la función maxwelliana de distribución de energía de los electrones siendo  $\mathcal{E}$  la energía del electrón incidente, y  $\Delta E$  la energía umbral de excitación. Reemplazando en (2.30) obtenemos:

$$\langle v\sigma_{01} \rangle = \frac{2\pi^{1/2} \hbar a_o}{m} \int_{\Delta E}^{\infty} \frac{\sigma_{01}}{\pi a_0^2} \frac{\exp(\mathcal{E}/T) \mathcal{E} d\mathcal{E}}{R_y^{1/2} T^{3/2}} \quad (2.51)$$

Expresando la temperatura y la energía en función de sus valores umbrales:

$$u = \frac{\mathcal{E} - \Delta E}{\Delta E} \text{ y } \beta = \frac{\Delta E}{T} \quad (2.52)$$

obtenemos:

$$\langle v\sigma_{01} \rangle = \frac{2\pi^{1/2}\hbar a_0}{m} \left( \frac{\Delta E}{R_y} \right)^{1/2} \beta^{3/2} \exp(-\beta) \int_0^\infty \frac{\sigma(u)}{\pi a_0^2} (u+1) \exp(-\beta u) du \quad (2.53)$$

Finalmente haciendo aproximaciones numéricas para expresar a la sección eficaz, el coeficiente de la tasa de excitación puede escribirse como [42]:

$$\langle v\sigma \rangle = 10^{-8} \frac{1}{2l_0 + 1} \left( \frac{R_y}{\Delta E} \frac{E_1}{E_0} \right) \exp(-\beta) G'(\beta) \quad (2.54)$$

donde  $l_0$  es el numero cuántico orbital en el estado inicial y  $E_i$  son los niveles de energía, y  $G'(\beta)$  satisface:

$$G'(\beta) = \begin{cases} A' \frac{\beta^{1/2}(\beta+1)^{1/2}}{\beta+\chi'}, & (z=1) \\ A' \beta^{1/2} \frac{\beta+1}{\beta+\chi'}, & (z>1) \end{cases} \quad (2.55)$$

donde los parámetros  $A$  y  $\chi$  se obtienen por medio de cálculos numéricos realizando ajustes por cuadrados mínimos y que se encuentran tabulados para las distintas transiciones.

Dado que  $G'(\beta)$  es simétrico respecto de los estados inicial y final considerados, podemos entonces expresar el coeficiente de la tasa para la desexcitación haciendo uso de las expresiones (2.42) y (2.54).

### Fórmula semiempírica para el cálculo del coeficiente de la tasa de excitación

En el rango de altas energías del electrón, la sección eficaz para la excitación correspondiente a un transición ópticamente permitida ( $\Delta l = \pm 1$ ,  $\Delta S = 0$ ) puede escribirse como [48]:

$$\sigma_{ij} = \pi a_0^2 \frac{8\pi}{\sqrt{3}} f_{ij} \left( \frac{R_y}{\Delta E} \right) \frac{\gamma(u)}{u+1} \quad (2.56)$$

donde  $a_0$  es el radio de Bohr ( $0.5 \times 10^{-8}$  cm),  $f_{ij}$  es la intensidad de oscilador para la transición  $i \rightarrow j$ ,  $R_y$  (Rydberg) es una constante equivalente a 13.6 eV,  $\Delta E$  es el salto

de energía en la transición,  $u$  es la energía de los electrones expresada en unidades de la energía umbral de excitación:  $u = (E_i - \Delta E)/\Delta E$ , siendo  $E_i$  la energía inicial del electrón, y  $\gamma(u)$  es determinada por datos experimentales y su valor para  $z > 1$  es: 0.2 para  $u < 1$ , aumentando hasta 1 para  $u = 6$ .

Haciendo uso de la relación (2.56), el coeficiente de la tasa de excitación puede ser expresada por:

$$\langle v\sigma_{ij} \rangle = 10^{-8} \quad 32 \quad f_{ij} \left( \frac{R_y}{\Delta E} \right)^{3/2} \beta^{1/2} \exp(-\beta) p(\beta) \quad (2.57)$$

donde el factor  $p(\beta)$  varía entre 0.2 y 1 para  $z > 1$  cuando  $\beta$  es variado entre 10 y 0 [42].

### Ionización y recombinación de tres cuerpos

En el caso de la ionización es posible realizar un tratamiento similar al propuesto para el coeficiente de excitación. Despreciando los efectos de intercambio, para la transición  $n_0 l_0^m L_0 S_0 \rightarrow n_0 l_0^{m-1} L_i S_i + e$  el coeficiente de la tasa de ionización estará expresada por:

$$\langle v\sigma_i \rangle = 10^{-8} \frac{Q_i}{2l_0 + 1} \left( \frac{R_y}{E_z} \right)^{3/2} \exp(-\beta) G(\beta), \text{ con } \beta = E_z/T \quad (2.58)$$

donde  $Q_i$  y  $G(\beta)$  son funciones que se ajustan numéricamente y que se pueden obtener de [42].

La coeficiente correspondiente a la tasa de recombinación de tres cuerpos (proceso inverso al de ionización) puede obtenerse a partir de [42]:

$$\kappa_{r3cpas} = \frac{g_z}{2g_{z+1}} \left( \frac{2\pi\hbar^2}{mT} \right)^{3/2} \exp(\beta) \langle v\sigma_i \rangle \quad (2.59)$$

### Fórmula semiempírica para obtener el coeficiente de la tasa de ionización

A efectos de estimar éste coeficiente, haremos uso de la expresión semiempírica propuesta por Lotz [49]:

$$\langle v\sigma_i \rangle = 10^{-8} 6m \left| \frac{R_y}{E_z} \right| \beta^{-1/2} \exp(\beta) f(\beta) [\text{cm}^3 \text{s}^{-1}] \quad (2.60)$$

donde el factor  $f(\beta)$  está dado por:

$$f(\beta) = -\beta \exp(\beta) \text{Ei}(\beta) \quad (2.61)$$

y  $\text{Ei}(\beta)$  es la exponencial integral que se expresa como:

$$E_i(\beta) = \int_{\beta}^{\infty} \frac{\exp(-z)}{z} dz \quad (2.62)$$

que puede resolverse numéricamente o por la expresión analítica de Ref. [50].

### Recombinación dielectrónica y radiativa

En los plasmas de altas densidades el proceso de recombinación de tres cuerpos es el más importante. El número de eventos por unidad de tiempo es proporcional al cuadrado de la densidad de electrones y está dado por:  $N_{z+1} n_e^2 \kappa_{r3cp}$ . Sin embargo a densidades electrónicas medias o bajas los procesos de recombinación de dos cuerpos (dielectrónicos y radiativos), son los dominantes. Para el análisis del primer proceso, haremos la suposición que la autoionización que compite con la recombinación, es despreciable. En ese caso el proceso se describe por:

$$X_{z+1}(\alpha_0) + e \rightarrow X_z^{**}(\gamma) \rightarrow X_z^*(\alpha_0 nl) + \hbar\omega \quad (2.63)$$

Este se entiende de la siguiente forma: un ion que se encuentra en un estado metaestable  $\alpha_0$  (dado que para los estados excitados, este proceso no es importante), captura un electrón que no tiene suficiente energía como para excitarlo y lo ubica en un cierto estado  $nl$ . Luego de la captura, dado que se encuentra en un nivel inestable, emite radiativamente regresando al estado inicial  $\alpha_0$  pero conservando al electrón capturado en el estado  $nl$ .

El resultado aproximado para el coeficiente de recombinación obtenido de Ref. [42], es el siguiente:

$$\begin{aligned} \kappa_{rdiel} &= 10^{-13} Q_d A_d \beta^{3/2} \exp(-\beta \chi_d) \left[ cm^3 s^{-1} \right] \\ \beta &= (z+1) R_y / T \end{aligned} \quad (2.64)$$

donde  $A_d$  y  $\chi_d$  son parámetros a ajustar y el factor  $Q_d$  depende del tipo de transición.

El proceso de recombinación radiativa es el siguiente:



Para éste caso usaremos la siguiente aproximación para el coeficiente de la tasa de recombinación correspondiente [42]:

$$\begin{aligned} \kappa_{rrad} &= 10^{-13} \left| \frac{E_a}{R_y} \right|^{1/2} \frac{A\beta^{3/2}}{\beta + \chi} \left[ cm^3 s^{-1} \right] \\ \beta &= |E_a|/T \end{aligned} \quad (2.66)$$

siendo  $A$  y  $\chi$  son parámetros de ajuste, y  $E_a$  la energía de ionización del nivel  $a$ .

### Fórmula semiempírica para el cálculo del coeficiente de la tasa de recombinación dielectrónica

Este coeficiente puede calcularse a través de la fórmula semiempírica de Burgess [51]:

$$\kappa_d(\alpha) = 10^{-13} B_d \beta^{3/2} \exp(-\beta\chi_d) \left[ cm^3 s^{-1} \right] \quad (2.67)$$

donde:

$$\beta = (z+1)^2 R_y / T_e \quad (2.68)$$

$$B_d = 480 f_{\alpha_0\alpha} \left( \frac{z\chi}{z^2 + 13.4} \right)^{1/2} \left[ 1 + 0.105(z+1)\chi + 0.015(z+1)^2\chi^2 \right]^{-1} \quad (2.69)$$

$$\chi_d = \chi \left[ 1 + 0.015 \frac{z^3}{(z+1)^2} \right]^{-1}, \quad \chi = \frac{E_{\alpha\alpha_0}}{(z+1)^2 R_y} \quad (2.70)$$

con  $f_{\alpha_0\alpha}$  la intensidad de oscilador correspondiente a la transición  $\alpha_0 \rightarrow \alpha$  perteneciente al ion  $z+1$ .

### 2.2.5 Compresión radial de la descarga

Un fenómeno asociado a las descargas con baja presión y corriente elevada, es la de la aparición del pinch, es decir una compresión radial del plasma. Según

trabajos previos [13], éste aumento en la densidad electrónica en el centro del tubo produciría un incremento en el bombeo de los niveles que dan lugar a la emisión láser, que permitiría producir la inversión de población.

El pinch ocurre cuando la presión magnética  $B^2$  iguala o excede a la energía cinética de las partículas, es decir cuando  $nkT \leq B^2$ . Usando el modelo de pinch de Bennet citado en la Ref. [13], si  $p$  la presión del gas,  $n$  su densidad,  $B$  el campo magnético y  $v$  la velocidad radial, entonces:

$$n \left( \frac{dv}{dt} \right)_r = \frac{\partial p}{\partial r} + \frac{B}{4\pi r} \frac{d}{dr} (rB) \quad (2.71)$$

Suponiendo que la velocidad radial del plasma es cero, podemos integrar obteniéndose:

$$\int_0^R 2p(r) 2\pi r dr = \frac{[RB(R)]^2}{4} = \frac{I^2}{c} \quad (2.72)$$

donde  $R$  es el radio efectivo, e  $I$  la corriente. En general dado que para nuestro plasma  $T_e \gg T_i$ , entonces  $p(r) \simeq n_e(r)kT_e$ . Finalmente, reemplazando en la integral obtenemos:

$$2k \langle n_e(r) \rangle T_e \pi R^2 = \frac{I^2}{c} \quad (2.73)$$

con  $\langle n_e(r) \rangle$  la densidad electrónica promediada espacialmente. Midiendo luego  $I$ ,  $n_e$  y  $R$  es posible estimar  $T_e$ .

## 2.3 Dinámica del láser

Se describen los fundamentos para conseguir la inversión de población, el modelado a través de ecuaciones de balance para las poblaciones y los fotones involucrados, como así también los procesos que dan lugar a la aparición de oscilaciones en la emisión.

### 2.3.1 Introducción

Fuentes eléctricas pulsadas fueron usadas desde el advenimiento del láser [52] para producir la inversión usando como medio activo un gas a baja presión (del

orden de algunos mTorr). Básicamente esta técnica permite introducir en el plasma una alta potencia eléctrica en un tiempo muy corto. Si un potencial suficientemente alto es aplicado al tubo de descarga, se produce la ruptura del gas (breakdown) y la corriente comienza a crecer rápidamente hasta alcanzar un valor determinado por las características del circuito (inductancia, resistencia, energía disponible). Las cargas son aceleradas por el campo adquiriendo energía cinética y alcanzando rápidamente una distribución de velocidades que satisface la distribución de Boltzman, por lo que nos es posible asignarle una temperatura electrónica  $T_e$ . Al mismo tiempo, el campo eléctrico comienza a disminuir hasta alcanzar un valor que es independiente de la corriente [38].

En general, en gases monoatómicos la excitación se produce por colisión entre los electrones con los átomos o iones mientras que en los poliatómicos se deben a colisiones de segunda especie: excitación por transferencia átomo-átomo, e ionización Penning [44]. El decaimiento de los estados excitados se debe fundamentalmente a procesos colisionales con electrones y choques con las paredes del tubo, para el caso de gases monoatómicos, y colisión entre átomos, para los gases poliatómicos.

### 2.3.2 Condiciones para la inversión de población; ganancia

En los sistemas atómicos, las transiciones entre estados energéticos se produce por intercambio de radiación dada por la ley de Bohr:  $E_k - E_i = h\nu$ . Cuando el sistema atómico se encuentra en un estado excitado, se produce lo que se denomina emisión espontánea, caracterizada por el coeficiente  $A_{ki}$ . Esto también puede ocurrir por efecto de una estimulación electromagnética externa. Entonces, la probabilidad total de transición será:

$$P_{ki} = A_{ki} + u_\nu B_{ki} \quad (2.74)$$

donde  $u_\nu$  es la densidad de radiación correspondiente a la diferencia de energía de los niveles y  $B_{ki}$  el coeficiente de emisión estimulada. Análogamente, es posible producir absorción con una probabilidad:

$$P_{ik} = u_\nu B_{ik} \quad (2.75)$$



donde  $B_{ik}$  es el coeficiente de absorción. En equilibrio los coeficientes A y B están relacionados por:

$$N_k A_{ki} + N_i B_{ki} u_\nu = N_i B_{ik} u_\nu \quad (2.76)$$

donde  $N_i$  son las poblaciones en cada estado  $i$ .

Haciendo uso de la fórmula de Planck para expresar la densidad de energía  $u_\nu$  como:

$$u_\nu = \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1} \quad (2.77)$$

donde los distintos coeficientes ya fueron definidos previamente. Resolviendo (2.76) y usando (2.77) obtenemos las relaciones entre los coeficientes de absorción, emisión espontánea y estimulada [37]:

$$\begin{aligned} B_{ik} &= \frac{g_k}{g_i} B_{ki} \\ \frac{A_{ki}}{B_{ki}} &= \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} \end{aligned} \quad (2.78)$$

conocidas como relaciones de Einstein.

La absorción de la luz al pasar a través de un medio es descrito por medio del coeficiente de atenuación  $\alpha$ . La atenuación en la intensidad está dada por [37]:

$$dI = -\alpha I dz \quad (2.79)$$

donde  $\alpha$  representa la fracción absorbida de intensidad por unidad de longitud.

Supongamos ahora que una onda electromagnética de frecuencia  $\nu$  que viaja en la dirección  $z$  en un medio atómico con niveles de energía  $E_i$  y  $E_k$ . El coeficiente de absorción  $\alpha_{ik}$  puede ser relacionado con la sección eficaz de absorción  $\sigma_{ik}$  por medio de:

$$\alpha_{ik} = \sigma_{ik} \left( N_i - \frac{g_i}{g_k} N_k \right) \quad (2.80)$$

para la transición analizada. Si suponemos que  $\alpha_{ik}$  es independiente de la intensidad, integrando sobre ésta última obtenemos la ley de Beer:

$$I(\nu, z) = I_0(\nu, 0) \exp(-\alpha_{ik}(\nu)z) \quad (2.81)$$

Para el caso que  $N_k > (g_k/g_i)N_i$  el coeficiente  $\alpha_{ik}$  se hará negativo y la onda será amplificada. Si  $L$  es la longitud del medio activo, la ganancia sin pérdidas en un viaje redondo estará determinado por:

$$G(\nu) = I(\nu, 2L)/I(\nu, 0) = \exp \{-2\alpha(\nu)L\} \quad (2.82)$$

Diversos factores introducen pérdidas en la cavidad: absorción en las ventanas, difracción en las aberturas, scattering por imperfección en los materiales, etc. Por esto es necesario introducir un factor de pérdida que las tenga a todas en cuenta. Si  $\beta$  es la pérdida de energía por unidad de tiempo, y asumiendo que las pérdidas se distribuyen uniformemente a lo largo de la cavidad de longitud  $d$ , la intensidad  $I$  luego de un viaje redondo será:

$$I(\nu, 2d) = I(\nu, 0) \exp \{-2\alpha(\nu)L - 2\beta d/c\} \quad (2.83)$$

es decir, que tendremos amplificación si  $-2\alpha(\nu)L > 2\beta d/c$  o, haciendo uso de (2.80) obtenemos:

$$\Delta N = N_k(g_i/g_k) - N_i > \Delta N_{umbral} = \frac{\beta d}{c\sigma(\nu)L} \quad (2.84)$$

Por otro lado, si  $u_\nu$  es la densidad de energía del haz colimado que pasa por el medio, la intensidad en un intervalo de frecuencias alrededor de  $\nu$  será:

$$I_\nu = u_\nu c \Delta \nu \quad (2.85)$$

Debido al ensanchamiento en la línea, sólo una parte de las poblaciones de los niveles  $i$  y  $k$  estarán disponibles para realizar las transiciones. La tasa a la que se producen dichas transiciones estará dada por:

$$B_{ik}u_\nu \Delta N_i = B_{ik}(I_\nu/c) \frac{\Delta N_i}{\Delta \nu} \quad (2.86)$$

Como cada transición adiciona o sustrae una cantidad de energía  $h\nu$  a la onda electromagnética, el cambio en la densidad de energía será:

$$\frac{d}{dt}(u_f \Delta \nu) = (B_{21}\Delta N_2 - B_{12}\Delta N_1) \quad (2.87)$$

Integrando a lo largo del recorrido  $z$  y por comparación con la ecuación (2.81) obtenemos para el término de ganancia en pequeña señal:

$$\alpha_\nu = \frac{h\nu}{c} \left\{ \frac{\Delta N_k}{\Delta \nu} - \frac{g_k \Delta N_i}{g_i \Delta \nu} \right\} B_{ki} \quad (2.88)$$

Expresión válida para el caso que la intensidad es pequeña, es decir que el perfil de línea es el mismo para líneas que están ensanchadas homogéneamente e inhomogéneamente.

### 2.3.3 Excitación del láser y ecuaciones de balance

En la mayoría de los láseres, su acción tiene lugar entre dos estados excitados que se encuentran bien por encima del nivel fundamental. Su población es pequeña en comparación a la densidad total; esto es especialmente cierto para los láseres gaseosos en los que los anchos de línea son angostos y una inversión pequeña en las densidades de población alcanzan para producir una ganancia significativa.

En términos de procesos elementales, el modelo de 4 niveles es el que mejor se ajusta para el láser de xenón dado que en todas las transiciones estudiadas, los niveles involucrados son estados excitados del ion correspondiente como veremos luego.

#### Modelo de 4 niveles

Usualmente el proceso de bombeo y relajación ocurre a través de complejos mecanismos en los que intervienen muchos niveles. Sin embargo, éstos pueden reducirse a sólo 4, según se observa en la Figura 2.3 (Ref. [53]).

El bombeo desde el nivel fundamental  $E_1$  es realizado para láseres gaseosos por impacto electrónico directo. El proceso de bombeo produce una probabilidad estimulada de absorción  $W_{14}$  y de emisión  $W_{41}$ , siendo  $W_{14} = W_{41} = W_b$ . Por otra parte supondremos que el nivel 4 decae en principio sólo de manera radiativa, por lo que la ecuación de balance para éste nivel será:

$$\frac{dN_4}{dt} = W_b(N_1 - N_4) - N_4/\tau_4 \quad (2.89)$$

siendo  $\tau_4$  el tiempo de vida del nivel, que está determinado por:

$$\tau_4^{-1} = \sum_{i=1}^3 A_{4i} \quad (2.90)$$

En estado estacionario, obtenemos para la población de  $E_4$ :

$$N_4 = \frac{W_b\tau_4}{1 + W_b\tau_4} N_1 \simeq W_b\tau_4 N_1 \quad (2.91)$$

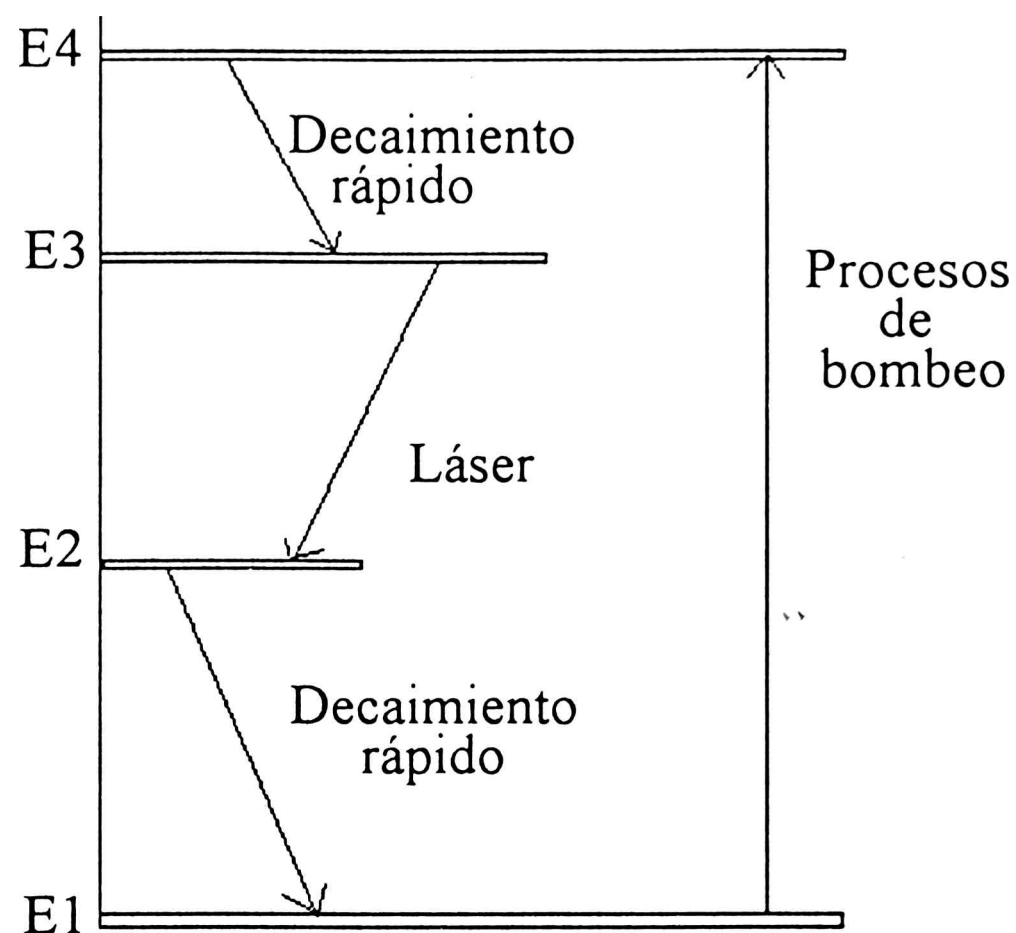


Figura 2.3: Esquema de bombeo para un láser de cuatro niveles.

aproximación que será válida siempre que  $W_b\tau_4 \ll 1$ .

El bombeo directo desde el nivel 1 al 3 es despreciable dado que en general tiene una sección eficaz de absorción mucho menor que hacia el nivel 4. En consecuencia las ecuaciones de balance para las poblaciones correspondientes a los niveles  $E_3$  y  $E_2$  serán:

$$\begin{aligned}\frac{dN_3}{dt} &= A_{43}N_4 - N_3/\tau_3 \\ \frac{dN_2}{dt} &= A_{42}N_4 + A_{32}N_3 - A_{21}N_2\end{aligned}\quad (2.92)$$

Suponiendo ahora que el sistema alcanza el estado estacionario  $dN_3/dt = 0$ , la solución para la población del nivel  $E_3$  será:

$$N_3 = \tau_3 A_{43} N_4 \quad (2.93)$$

Ahora, reemplazando (2.93) en la expresión para  $N_2$  (2.92) se obtiene:

$$N_2 = \left\{ \frac{A_{32}}{A_{21}} + \frac{A_{42}}{A_{43}A_{21}\tau_3} \right\} N_3 = \beta N_3 \quad (2.94)$$

por lo que si  $\beta$  es menor que 1 tendremos inversión de población. Puesto que en general  $E_4$  decae fundamentalmente sobre  $E_3$  el segundo término del corchete es muy pequeño frente al primero, por lo que la condición para inversión de población se reduce a:

$$\beta = N_2/N_3 \simeq A_{32}/A_{21} = \tau_{21}/\tau_{32} \ll 1 \quad (2.95)$$

es decir que la población del nivel inferior del láser  $E_2$ , deberá decaer mucho más rápido sobre el fundamental  $E_1$  que lo que decae de manera espontánea el nivel superior láser sobre el inferior.

### Ecuaciones de balance para los fotones

Ya vimos que la intensidad circulante al invertir la población en la cavidad ( $\alpha > 0$ ), estará dado por la ecuación (2.83):

$$I(\nu, 2d) = I(\nu, 0) \exp \{2\alpha(\nu)L - 2\beta d/c\} = I_0 \exp(\delta_m - \delta_c) \quad (2.96)$$

donde la notación ya fue introducida previamente. El aumento luego de  $N$  pasajes será:

$$I(NT) = I_0 \exp \{(\delta_m - \delta_c)N\} \quad (2.97)$$

siendo  $T$  el tiempo necesario para realizar un viaje redondo. Dado que luego de  $N$  pasajes el tiempo transcurrido será de  $t=NT$ , podemos escribir:

$$I(t) = I_0 \exp \{(\gamma_m - \gamma_c)t\} \quad (2.98)$$

con  $\gamma_m = \delta_m/T$ , el coeficiente de ganancia y  $\gamma_c = \delta_c/T$  la inversa del tiempo de vida de los fotones en la cavidad.

Cuando se enciende el láser, la intensidad comienza a crecer de manera exponencial a partir de un cierto ruido que corresponde con fotones espontáneos. Esto continúa hasta alcanzar un valor máximo en el que la ganancia iguala a las pérdidas.

Si los coeficientes  $\gamma_m$  y  $\gamma_c$  varían en el tiempo, la ecuación (2.98) deberá escribirse de manera diferencial:

$$\frac{dI(t)}{dt} = \{\gamma_m(t) - \gamma_c(t)\} I(t) \quad (2.99)$$

que se corresponde con la mayor parte de los casos reales.

El número de fotones en la cavidad puede expresarse como el cociente entre la energía total circulante en la cavidad sobre la energía por cuanto, es decir:

$$n(t) \equiv \frac{\text{energía total en la cavidad}}{h\nu} = Cte * I_{circ}(t) \quad (2.100)$$

La constante en la ecuación puede ser expresada para el caso de una cavidad con baja ganancia, de área transversal A y longitud L como [53]:

$$n(t) \approx \frac{2V_c}{h\nu c} I_{circ.} \quad (2.101)$$

donde  $V_c = AL$  es el volumen de la cavidad para cada modo.

Ahora es posible escribir la ecuación de balance para los fotones por medio de (2.99) como:

$$\frac{dn(t)}{dt} = \{K\Delta N(t) - \gamma_c\} n(t) \quad (2.102)$$

donde hicimos uso del hecho que el coeficiente de ganancia satisface:

$$\gamma_m = K\Delta N \quad (2.103)$$

(tomando los  $g_i$  iguales). La constante de acople K, puede hallarse por comparación de la expresión para la ganancia (2.88) con la expresión (2.96) y usando que  $\gamma_m = \delta_m/T$  y la ecuación (2.103). Entonces:

$$K = \frac{\nu A_{21} \lambda^3}{2\pi \Delta\nu V_c} = \frac{A_{21}}{p} \quad (2.104)$$

La constante de acople es proporcional a la probabilidad de transición espontánea y a la constante p. Esta última es el número de modos en la cavidad y representa físicamente el número efectivo de modos que se hallan en el ancho de línea  $\Delta\nu$  multiplicado por  $\pi/2$  (Figura 2.4) para una línea lorentziana.

Ahora deberemos introducir el efecto de los fotones espontáneos sobre la expresión (2.102). La emisión espontánea es proporcional a la población del nivel superior, pero de ella solo la fracción con la dirección, polarización y frecuencia correcta se agregará al número total de fotones en (2.102). Se puede probar que la constante

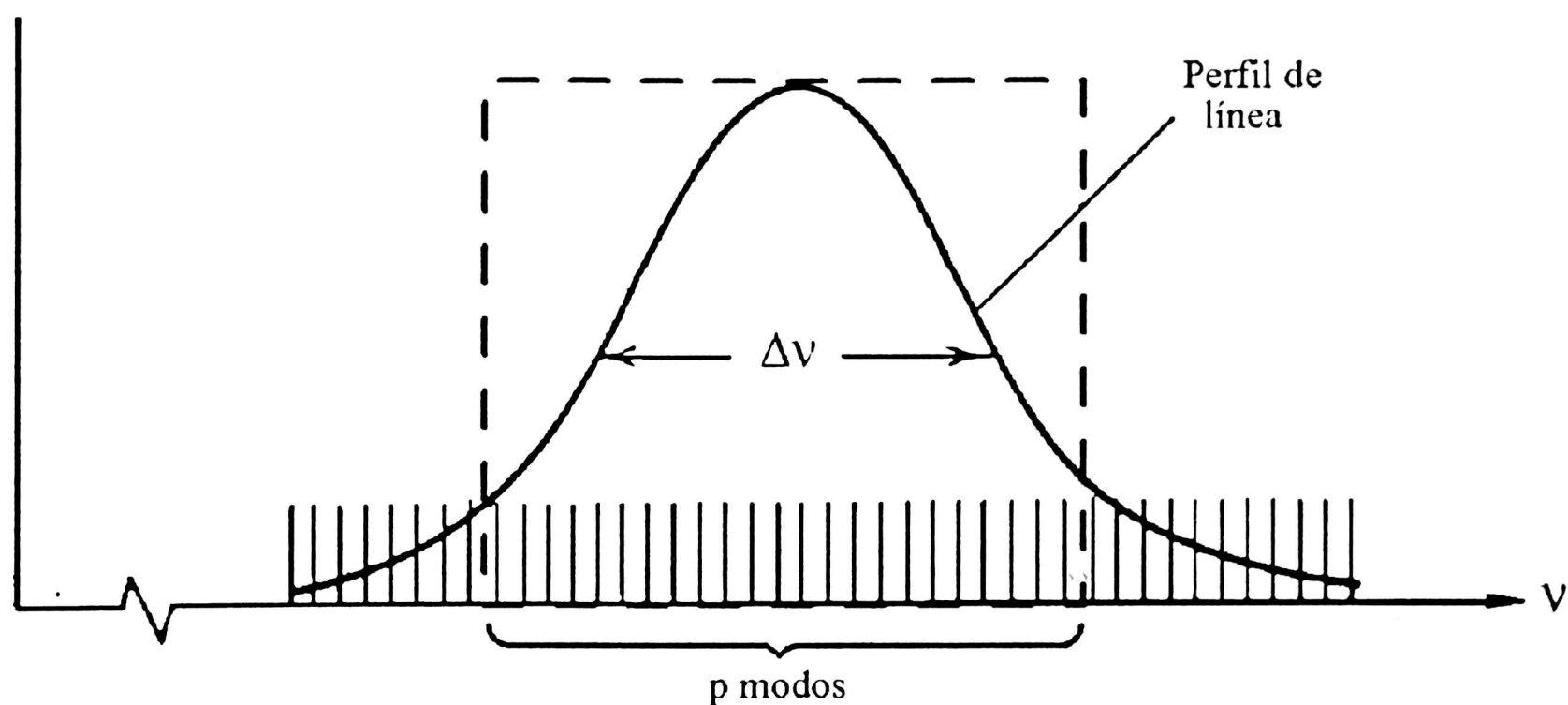


Figura 2.4: Interpretación física del número de modos en la cavidad  $p$  (la superficie del rectángulo coincide con el del perfil de línea).

de proporcionalidad es  $K$ . Entonces la ecuación de balance para el número total de fotones de frecuencia  $\nu$  en la cavidad será:

$$\frac{dn(t)}{dt} = \{K\Delta N(t) - \gamma_c\} n(t) + KN_3 \quad (2.105)$$

siendo  $N_3$  la población total en el nivel superior en la cavidad.

### Ecuaciones de balance para las poblaciones

La introducción de la cavidad hace necesario la inclusión del término estimulado a las ecuaciones de balance para las densidades de población. Estas se expresan:

$$\begin{aligned} \frac{dN_3}{dt} &= W_{23}N_2 - W_{32}N_3 + [excit.] + [desexcit.] \\ \frac{dN_2}{dt} &= W_{32}N_3 - W_{23}N_2 + [excit.] + [desexcit.] \end{aligned} \quad (2.106)$$

donde los términos estimulados  $W_{ij}$ , son directamente proporcionales a los fotones en la cavidad y los términos de excitación y desexcitación espontánea se analizaron previamente.

Cada vez que se realiza una transición, la energía  $h\nu$  deberá entregarse a un modo de la cavidad, de tal forma que el número de fotones en la cavidad se aumenta en una unidad para ese modo. El argumento inverso se aplica también para las transiciones de absorción, de tal forma que es fácil de ver que la constante de proporcionalidad es la constante de acople  $K$ , por lo que:

$$W_{32} = W_{23} = Kn(t) \quad (2.107)$$

Finalmente las ecuaciones de balance para los niveles superiores e inferiores de una transición láser se expresa como:

$$\frac{dN_3}{dt} = Kn(N_2 - N_3) + [excit.] + [desexcit.] \quad (2.108)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = Kn(N_3 - N_2) + [excit.] + [desexcit.] \quad (2.109)$$

En un láser real, la cavidad tiene un número muy grande de modos, por lo que las ecuaciones de balance para las poblaciones deberán ser reescritas para tener en cuenta a todos los modos posibles por medio de una suma sobre cada uno de ellos. Sin embargo un modelo que contiene toda la información física importante, se basa en suponer que sólo un modo es amplificado.

### Soluciones estacionarias; saturación de la ganancia

Dado que el tiempo de vida del nivel inferior láser, para el caso analizado es mucho menor que el superior, lo es también su población. En éste caso es posible desacoplar las ecuaciones de  $N_3$  (2.108) y  $N_2$  (2.109). Ahora el sistema a resolver se reduce a:

$$\frac{dN(t)}{dt} = R_p - \gamma N(t) - KN(t)n(t) \quad (2.110)$$

$$\frac{dn(t)}{dt} = Kn(t) \{N(t) + 1\} - \gamma_c n(t) \quad (2.111)$$

donde  $R_p$  indica a los términos de excitación,  $\gamma$  es la probabilidad de decaimiento por todo concepto (radiativa y no radiativa),  $\gamma_c$  es la inversa del tiempo de vida de los fotones en la cavidad, y  $K$  la constante de acople definida previamente.



Para hallar las soluciones estacionarias al sistema, se define el bombeo y la población normalizada, respecto al umbral:

$$r = \frac{R_p K}{\gamma \gamma_c}; \quad N_{umbral} = \frac{\gamma_c}{K} \quad (2.112)$$

Entonces las soluciones estacionarias a (2.110) y (2.111) son:

$$N_{est} = \frac{n_{est}}{n_{est} + 1} N_{umbral} \quad (2.113)$$

$$n_{est} = \frac{R_p - \gamma N_{est}}{K N_{est}} \quad (2.114)$$

Ahora, si  $r < 1$  la solución aproximada será:

$$n_{est} \simeq \frac{r}{1 - r}; \quad N_{est} \simeq r N_{umbral} \quad (2.115)$$

mientras que si  $r > 1$ :

$$n_{est} \simeq (r - 1) K p^2 / \gamma; \quad N_{est} \simeq N_{umbral} \quad (2.116)$$

De donde se observa que si  $r < 1$  la solución para los fotones permanecerá en un número pequeño, mientras que si  $r > 1$  pasa a ser muchos órdenes de magnitud más grande puesto que:  $K = A_{ik}/p$ ,  $p$  es del orden de  $10^{10}$  o mayor, mientras que  $A_{ik}$  y  $\gamma$  no difieren demasiado y son del orden de  $10^7 \text{ s}^{-1}$ , según se analizará en el Capítulo 4.

En resumen, si el bombeo es aumentado, desde valores pequeños de  $r$  menor a la unidad, el número de fotones crece lentamente hasta llegar a  $r = 1$ . Allí comienza a crecer en muchos órdenes de magnitud hasta alcanzar un equilibrio determinado por el bombeo, la emisión estimulada y las pérdidas en la cavidad; a éste estado se lo denomina saturación de la ganancia.

Una línea se dirá que está ensanchada homogéneamente si la probabilidad de absorción o emisión para una dada frecuencia  $\nu$  (que causa una transición de un nivel  $E_i \rightarrow E_k$ ), es igual para todos los átomos en el medio desde el mismo nivel  $E_i$ ; un ejemplo de esto es el ensanchamiento natural. En caso contrario se dirá que está ensanchada inhomogéneamente. El ensanchamiento por efecto Doppler posee

ésta característica, puesto que la probabilidad de emisión o absorción dependerá de la velocidad del átomo o ion.

Cuando comienza la oscilación del láser, la ganancia es mayor a las pérdidas y la onda es amplificada hasta alcanzar un valor estacionario. La ganancia del medio activo satura desde un valor inicial  $\alpha_0$  ( $I = 0$ ; o ganancia en pequeña señal) hasta un valor umbral donde la ganancia iguala a las pérdidas en cada viaje de ida y vuelta.

En el caso de una transición homogénea todos los iones en el nivel superior contribuirán a la emisión estimulada con una probabilidad:  $B_{ik}\rho g(\nu - \nu_0)$  donde  $g(\nu - \nu_0)$  es el perfil normalizado de la línea y  $\rho$  es la densidad de radiación. El coeficiente de amplificación  $\alpha_{sat}(\nu)$  cuando  $\rho > 0$ , es de la forma [37]:

$$\alpha_{sat}^{homog.}(\nu) = \frac{\alpha_0(\nu)}{1 + I/I_{sat}} \quad (2.117)$$

donde  $I_{sat}$  es la intensidad que satisface:

$$\frac{I}{I_{sat}} = \rho \frac{B_{32}}{A_{32}} = 1 \quad (2.118)$$

En el caso de una transición láser inhomogénea, el perfil de línea puede ser subdividido en secciones que sean homogéneas obteniéndose:

$$\alpha_{sat}^{inhomog}(\nu) = \frac{\alpha_0(\nu)}{\sqrt{1 + I/I_{sat}}} \quad (2.119)$$

## Oscilaciones en la emisión

A fin de analizar el comportamiento en función del tiempo, deberemos resolver las ecuaciones de balance para los fotones y las poblaciones de los niveles involucrados: (2.105), (2.108) y (2.109). Sin embargo, suponiendo que  $N_2 \simeq 0$ , como se hizo antes, y si  $N_3 = N \gg 1$  obtenemos:

$$\begin{aligned} \frac{dN(t)}{dt} &= R_p - \gamma N(t) - KN(t)n(t) \\ \frac{dn(t)}{dt} &= Kn(t)N(t) - \gamma_c n(t) \end{aligned} \quad (2.120)$$

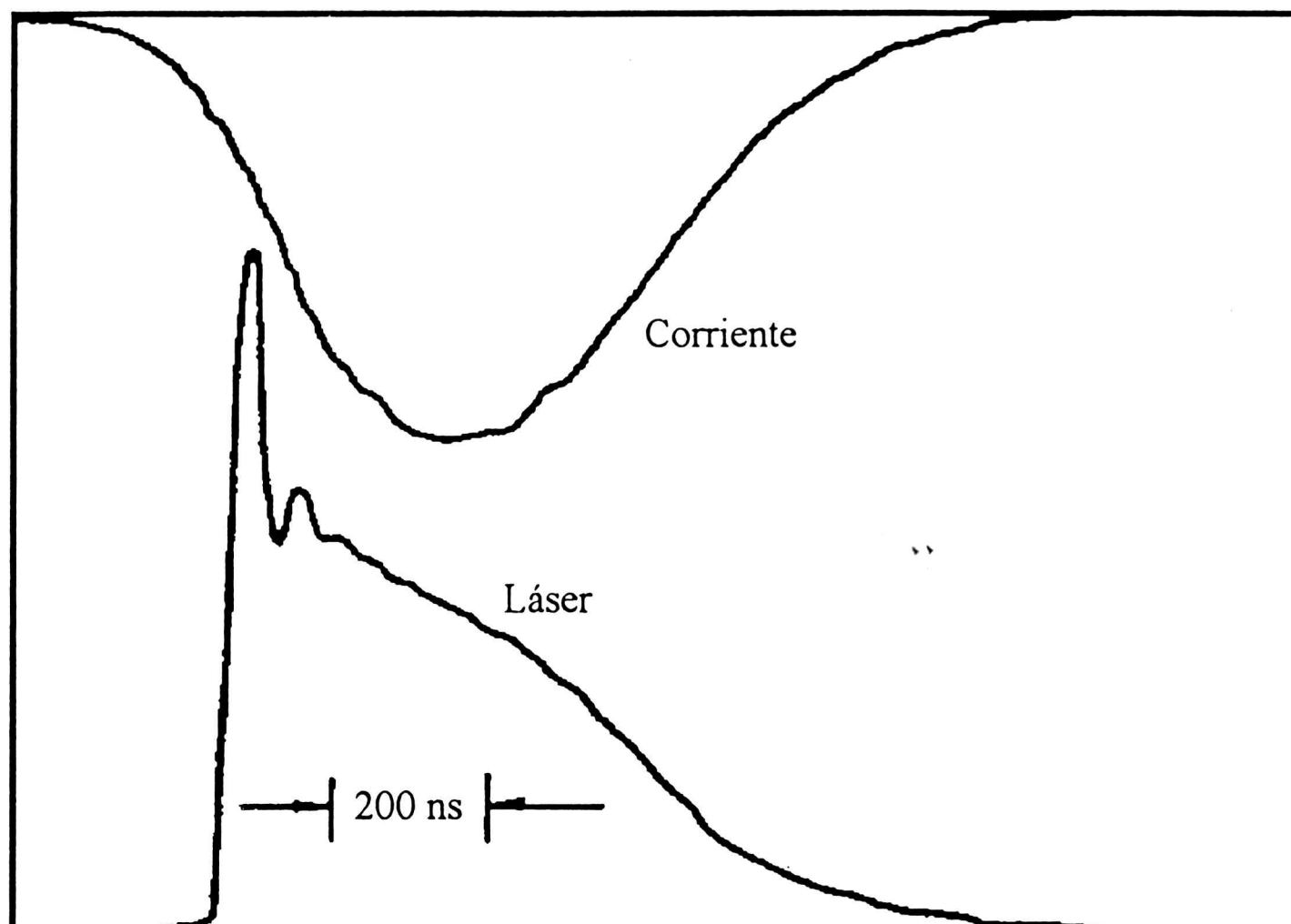


Figura 2.5: Oscilaciones en la emisión para un láser pulsado de  $\text{CO}_2$ ;  $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$  (Ref [53]).

Separamos ahora la solución al sistema de ecuaciones en una parte estacionaria y otra oscilatoria:

$$\begin{aligned} n(t) &= n_{est} + n_{osc}(t) \\ N(t) &= N_{umb} + N_{osc}(t) \end{aligned} \quad (2.121)$$

Reemplazando, en (2.120), la parte estacionaria se cancela pero asumiendo para la parte oscilatoria un comportamiento que varía con  $\exp(st)$  obtenemos el siguiente determinante [53]:

$$\begin{vmatrix} s & -(r-1) \\ \gamma_c & s + r\gamma \end{vmatrix} = 0 \quad (2.122)$$

donde  $r$  es el bombeo normalizado definido previamente.

En el caso que  $\gamma$  sea más pequeño que  $\gamma_c$  las raíces del sistema se expresan como:

$$s_1, s_2 \simeq -\frac{r\gamma}{2} \pm j\sqrt{(r-1)\gamma\gamma_c - \left(\frac{r\gamma}{2}\right)^2} = -\gamma_{osc} \pm j\omega'_{osc} \quad (2.123)$$

y la solución para los fotones toman la forma:

$$n(t) = n_{est} + n_{osc} \exp(-\gamma_{osc} t) \cos(\omega'_{osc} t) \quad (2.124)$$

que representa un término estacionario sumado a un término oscilatorio multiplicado por un coeficiente de amortiguamiento.

Si  $(r-1)\gamma\gamma_c$  es menor que  $(r\gamma/2)^2$  entonces el sistema es amortiguado rápidamente sin dar lugar a oscilaciones.

Un fenómeno de éste tipo se ha reportado en algunos láseres gaseosos como el de  $\text{CO}_2$  (Figura 2.5). Cuando un pulso rápido excita al tubo, puede suceder que al invertir la población y lograr ganancia en el sistema, ésta última crezca muy por encima del umbral antes que la oscilación tenga tiempo para formarse. En éste caso, aparece un único pulso seguido de varios pulsos más pequeños. A este comportamiento se lo denomina conmutación de la ganancia (gain switching) y es descrito por el mismo sistema de ecuaciones aquí presentado.

## Capítulo 3

# Dispositivos y Resultados Experimentales

Se describen a continuación los equipos y procedimientos experimentales utilizados, y los resultados obtenidos por medio de espectroscopía resuelta en tiempo.

### 3.1 Equipo experimental

El equipo experimental utilizado para el estudio temporal de la emisión espontánea y láser fue el siguiente (Figura 3.1):

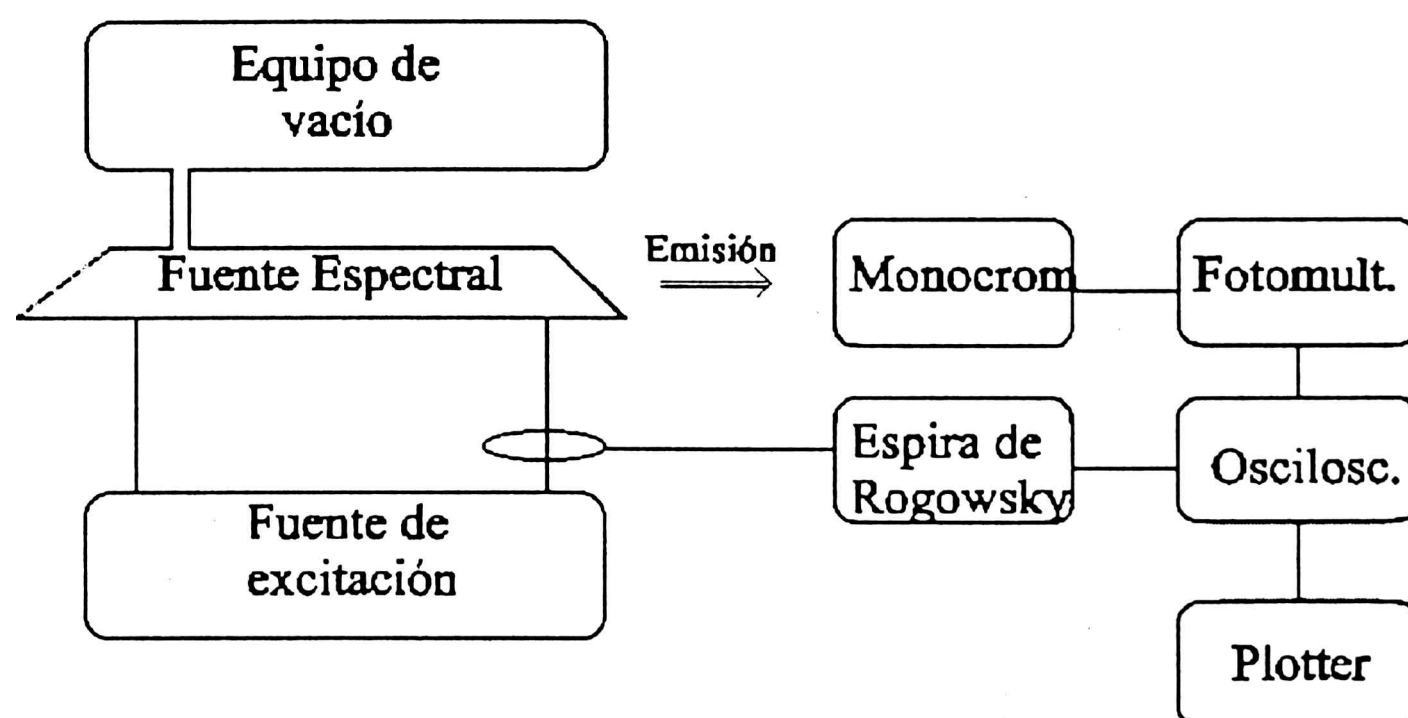


Figura 3.1: Diagrama de bloques del equipo experimental.

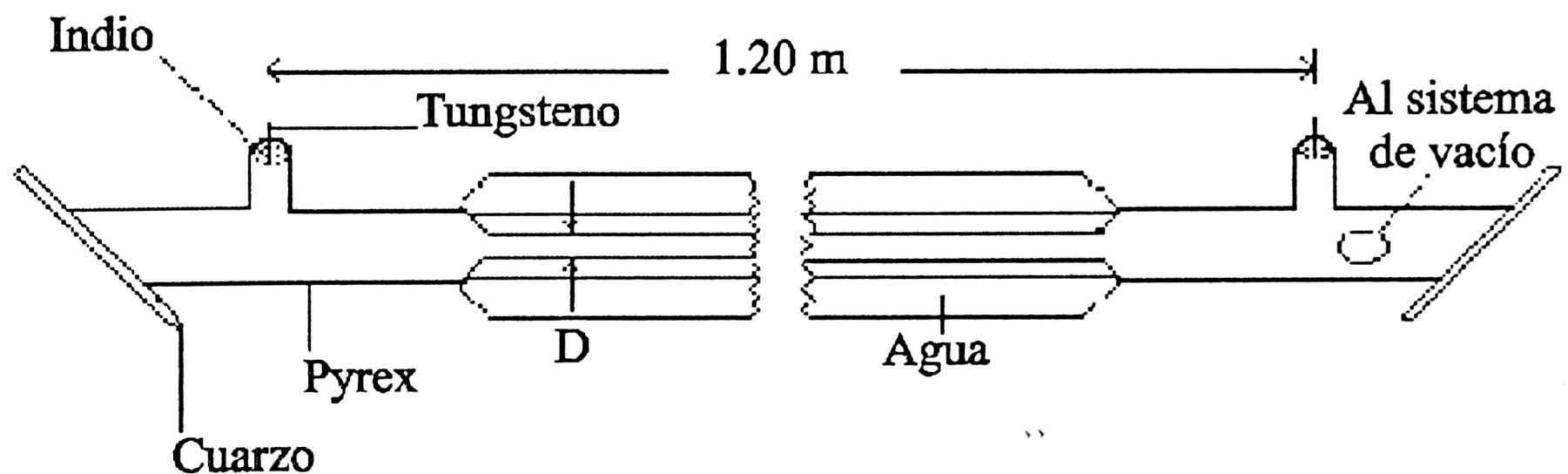


Figura 3.2: Diagrama de la fuente espectral. D es el diámetro interno del tubo (3, 5 mm).

La emisión de la fuente espectral ya sea espontánea o láser es enviada a un monocromador con el que se selecciona la longitud de onda o transición a estudiar. La emisión de la celda de descarga se enfoca en un sistema monocromador-fotomultiplicador de 5 ns de respuesta para su análisis temporal. La salida de éste se procesa en un osciloscopio digital y se registra en un plotter. Por otro lado una espira de Rogowsky calibrada se coloca rodeando a uno de los cables de alimentación del tubo que proporciona el pulso eléctrico, enviándose su señal al osciloscopio y al plotter.

### 3.1.1 Fuente espectral

Se utilizaron dos tubos contruidos en Pyrex de 3 mm y 5 mm de diámetro interno, 1.20 m de largo con dos electrodos de tungsteno recubierto con indio (Figura 3.2), lo cual mejora las características de la descarga al retener el indio la impurezas que se producen en la misma [23]. Está terminado en ventanas de cuarzo a fin de permitir el estudio en la región ultravioleta. Estas, se encuentran orientadas según el ángulo de Brewster para reducir las pérdidas por reflexión en las ventanas, con lo que la emisión láser resulta linealmente polarizada. El tubo está recubierto con una camisa de vidrio que permite su refrigeración por circulación de agua, para evitar que el calentamiento del gas modifique la presión y por lo tanto las condiciones de

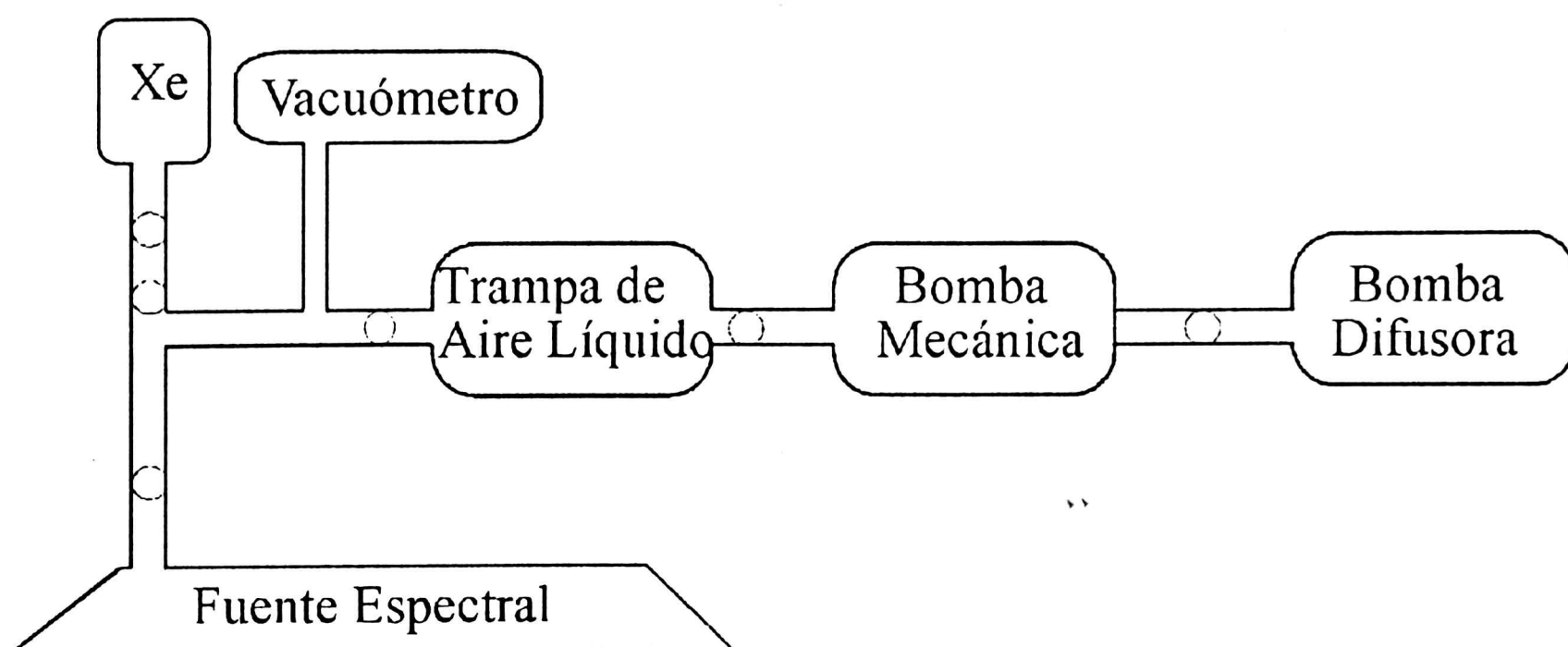


Figura 3.3: Sistema de vacío.

descarga. Esta se encuentra conectado a una línea de vacío que permite una evacuación del mismo a presiones menores a 1 mTorr. Posteriormente se llena con gas espectroscópicamente puro (99,99 % en volumen).

### 3.1.2 Sistema de vacío

Es un sistema convencional con bomba mecánica y bomba difusora de aceite (Figura 3.3). Cuenta con una trampa de aire líquido, que impide el paso de vapores de aceite al tubo. Esta misma trampa es utilizada como reservorio de gas a baja presión, a fin de conseguir un mejor control de la misma al obtener los espectros y al analizar la distribución temporal de la emisión láser. La presión en el tubo es medida por medio de un manómetro de termocupla vacuum gauge convencional. El balón de Xe empleado, posee un sistema de doble llave que permite dosificar el llenado del tubo con gas.

### 3.1.3 Sistema de descarga

La excitación del sistema se produjo descargando un arreglo de capacitores e inductancias dispuesto a tal fin (Figura 3.4). La capacidad del sistema se varió

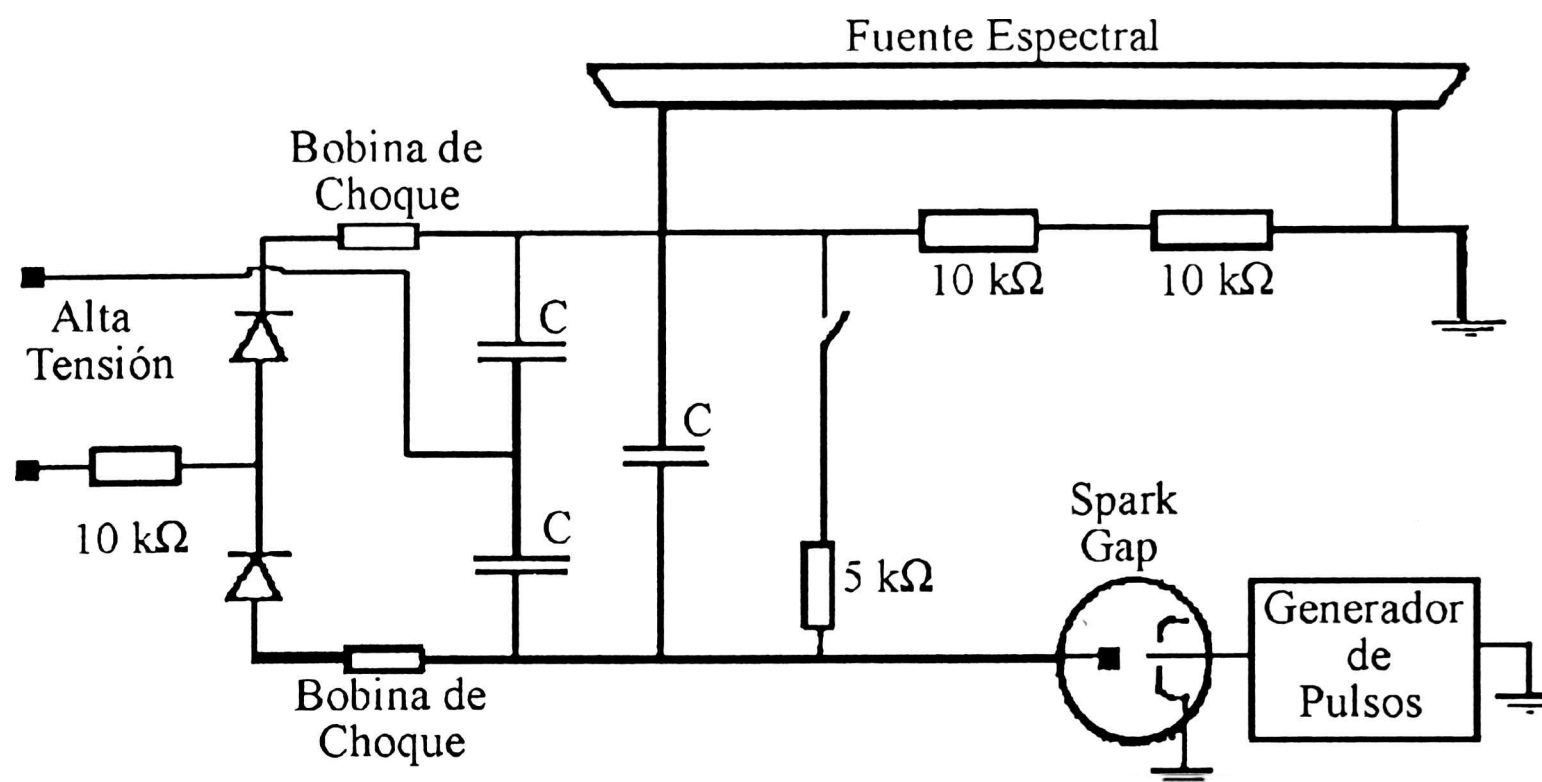


Figura 3.4: Esquema del circuito de descarga.

colocando en paralelo capacitores Maxwell que admiten hasta 40 kV de tensión pico y de hasta 140 nF de capacidad, consiguiéndose capacidades entre 100 y 420 nF. En algunos casos se colocaron inductancias en paralelo con los capacitores a fin de conseguir un perfil cuasi-plano del pulso de corriente y estudiar las características de doble pulso en emisión láser. Debido a que el circuito posee resistencias e inductancias intrínsecas, se logró en nuestro caso el mejor perfil de corriente con 3 inductancias de  $2,6 \mu\text{H}$ ,  $1,4 \mu\text{H}$  y  $1 \mu\text{H}$ . La tensión de carga del sistema se controla por medio de un variac conectado a la tensión de línea (220 V). El primero se conecta a un transformador de alta tensión alcanzándose los 14 kV. Esta tensión es doblada por la disposición del circuito de descarga. En efecto, durante el semiciclo positivo de corriente se carga un capacitor y en el otro semiciclo se carga el otro con lo que se consiguen tensiones en el tubo de hasta 28 kV. La descarga del banco de capacitores se realizaba a través de una llave rápida (spark-gap), que cuenta con dos electrodos, entre los que se aplica la alta tensión. Por medio de un generador de pulsos se cierra periódicamente el circuito de descarga con un pulso de alta tensión, produciéndose la ruptura dieléctrica del gas contenido en el tubo. Este ofrece mucha menor impedancia que las resistencias ( $20 \text{ k}\Omega$ ) al paso de la corriente, por lo que define el tiempo de descarga del capacitor.



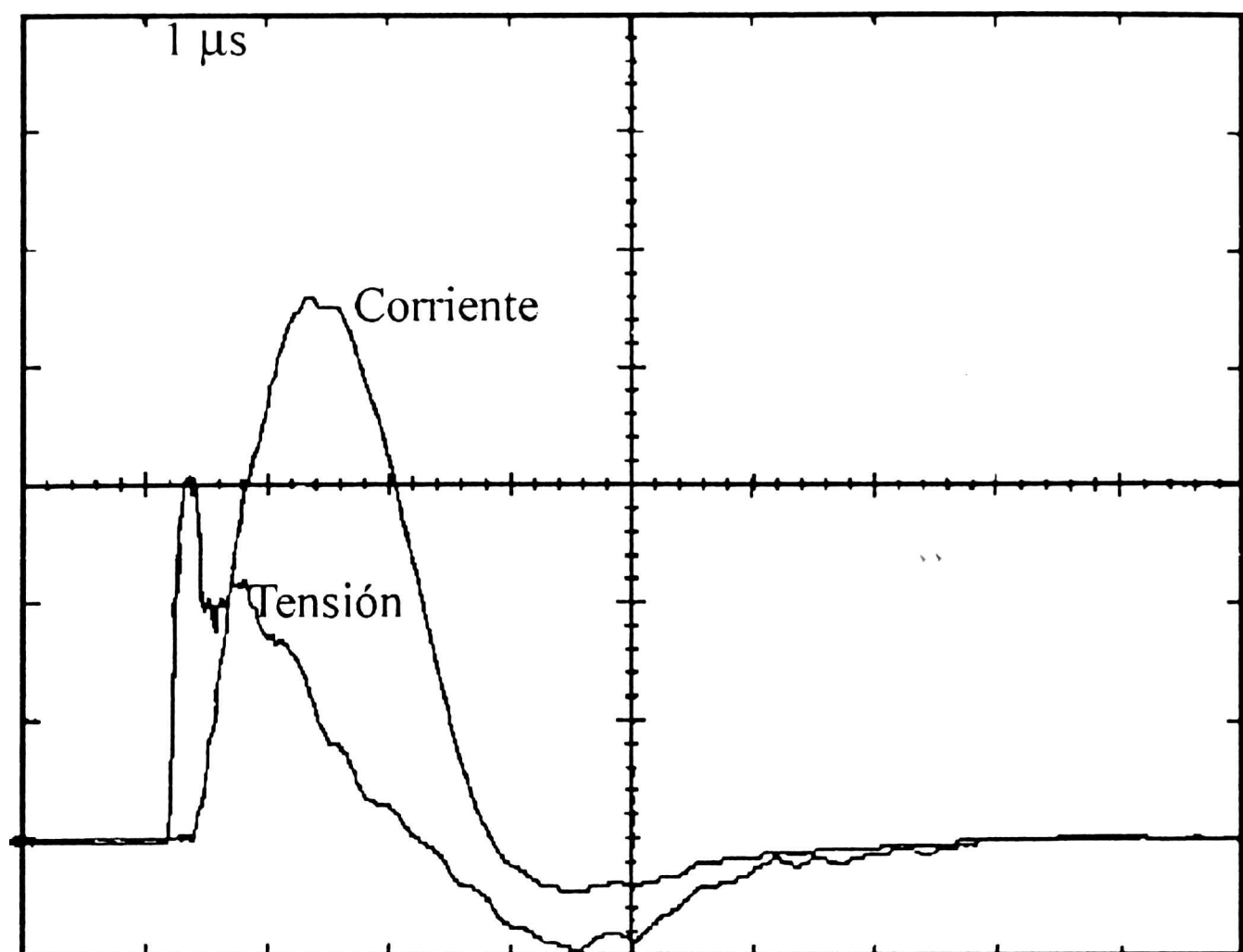


Figura 3.5: Distribución temporal de la corriente y su tensión para:  $p = 40$  mTorr,  $I_{\max} = 4$  kA,  $V_{\max} = 18$  kV

Por medio del programa de simulación de circuitos "P-SPICE" se obtuvieron los siguientes parámetros de descarga [54]:

$$R \sim 6 \Omega \quad L \sim 2.5 \mu H \quad C \sim 0.15 \mu F \quad (3.1)$$

Para una carga de 25 kV se puede predecir que el pulso de corriente será del orden de 3.2 kA.

Se realizaron medidas de las características de descarga del circuito mostrado en la Figura 3.4 por medio de un osciloscopio digital obteniéndose para una descarga de 18 kV una corriente de 4 kA con una duración aproximada de  $1.5 \mu s$  FWHM (ancho total medido a la altura media), y que no varía significativamente al modificar la presión. La tensión muestra una importante caída al comienzo de la corriente, alcanzando un equilibrio transitorio durante un corto tiempo para finalmente decaer como una función oscilatoria amortiguada.

### 3.1.4 Cavity Resonant

La cavidad está formada por dos espejos esféricos con depósito de multicapas de dieléctricos y con un radio de curvatura de 1.5 m. La reflectividad de los mismos para la región visible es del 99 % para el espejo reflector y del 85 % para el de acople al exterior. En la región de ultravioleta cercano se utilizaron varios pares de espejos con reflectividades variables según la región espectral. Estos fueron colocados en una configuración cercana a la confocal y el sistema fue alineado mediante un láser comercial de He-Ne Spectra - Physics de 2 mW de potencia continua con una longitud de onda de 6328 Å.

### 3.1.5 Instruments of measurements

La radiación emitida axialmente por la fuente es enviada al sistema de detección. El análisis temporal de las señales ópticas se realizó con un sistema monocromador-fotomultiplicador. El primero era de montaje Ebert de 0.5 m de distancia focal, con red plana de 1180 líneas / mm y con una resolución de 0.1 nm. El fotomultiplicador era de tipo Hamamatsu R 466 bialkali de 5 ns. de rise time. La corriente se midió con una espira de Rogowsky de baja impedancia rodeando uno de los cables de alimentación del tubo, con un rise-time de 2 ns y un factor de 0.1 V/A. Para la medida de la tensión se utilizó una punta de alta tensión 1000 X de 40 kV y un rise-time de 4 ns. Las medidas se enviaron a un osciloscopio digital Tektronik 2430 A de 150 MHz. de ancho de banda, que estaba conectado a un registrador (plotter) Hewlett Packard.

Para el análisis espectral de la emisión espontánea obtenida, la misma es enviada a un espectrógrafo. En la zona de 1500 Å hasta los 2200 Å se utilizó un espectrógrafo de vacío de montaje Robin, de 3 m de distancia focal y red de difracción cóncava de 1200 líneas / mm con lo se obtiene una dispersión de 2.7 Å / mm. A partir de los 2000 Å y hasta los 8000 Å se hizo uso de un espectrógrafo de montaje Ebert de 3.4 m de distancia focal, equipado con una red de difracción plana de 600 líneas / mm, superficie rayada de 12 cm por 5 cm, con blaze en 5000 Å y unblaze en 25000 Å. Los espectros se fotografiaron a primer orden con una dispersión de 4.8 Å / mm

en la región visible. Estos se registraron por medio de placas Ilford Q-2 para la región ultravioleta (1500 Å - 2000 Å), Kodak 103 A-O para región correspondiente al ultravioleta cercano (NUV), Kodak 103 A-F para el espectro visible y Kodak I-N para el infrarrojo. En algunos casos se utilizaron películas Kodak de 400 ASA para realizar un registro preliminar de la emisión láser y espontáneo correspondiente. Las posiciones de las líneas espectrales sobre las placas se midieron con un comparador fotoelectrónico automático Grant con una precisión de un micrón, por lo que el error en la determinación de las longitudes de onda se estimó en 0.01 Å.

Los distintos pares de espejos a utilizar para formar la cavidad fueron seleccionados según su reflectividad para las distintas regiones espectrales. La medida de la transmitancia de los espejos antes mencionados y de los filtros neutros utilizados en la determinación de la ganancia de la emisión del láser fueron realizadas por medio de un espectrofotómetro Beckman DU-65 con una resolución mayor a un nanómetro.

## 3.2 Resultados experimentales

### 3.2.1 Medida y obtención de los espectros

La determinación de las longitudes de onda y asignación iónica de las transiciones láser estudiadas, se realizó registrándose en distintos tipos de placas (según la región espectral) la emisión láser y espontánea correspondiente. En cada caso, se realizaron distintas exposiciones variando la presión de llenado de 5 a 500 mTorr y la tensión de descarga entre 5 a 20 kV. La frecuencia de disparo fue de 3-5 Hz y por periodos de 20 a 60 minutos para la emisión espontánea, y de 5-20 segundos para la emisión láser. El ancho de la rendija de entrada al espectrógrafo fue de aproximadamente 25  $\mu m$ .

### 3.2.2 Asignación iónica; métodos semiempíricos

La asignación iónica se realizó observando el comportamiento de las intensidades de emisión de las líneas para diferentes energías de descarga (variando la

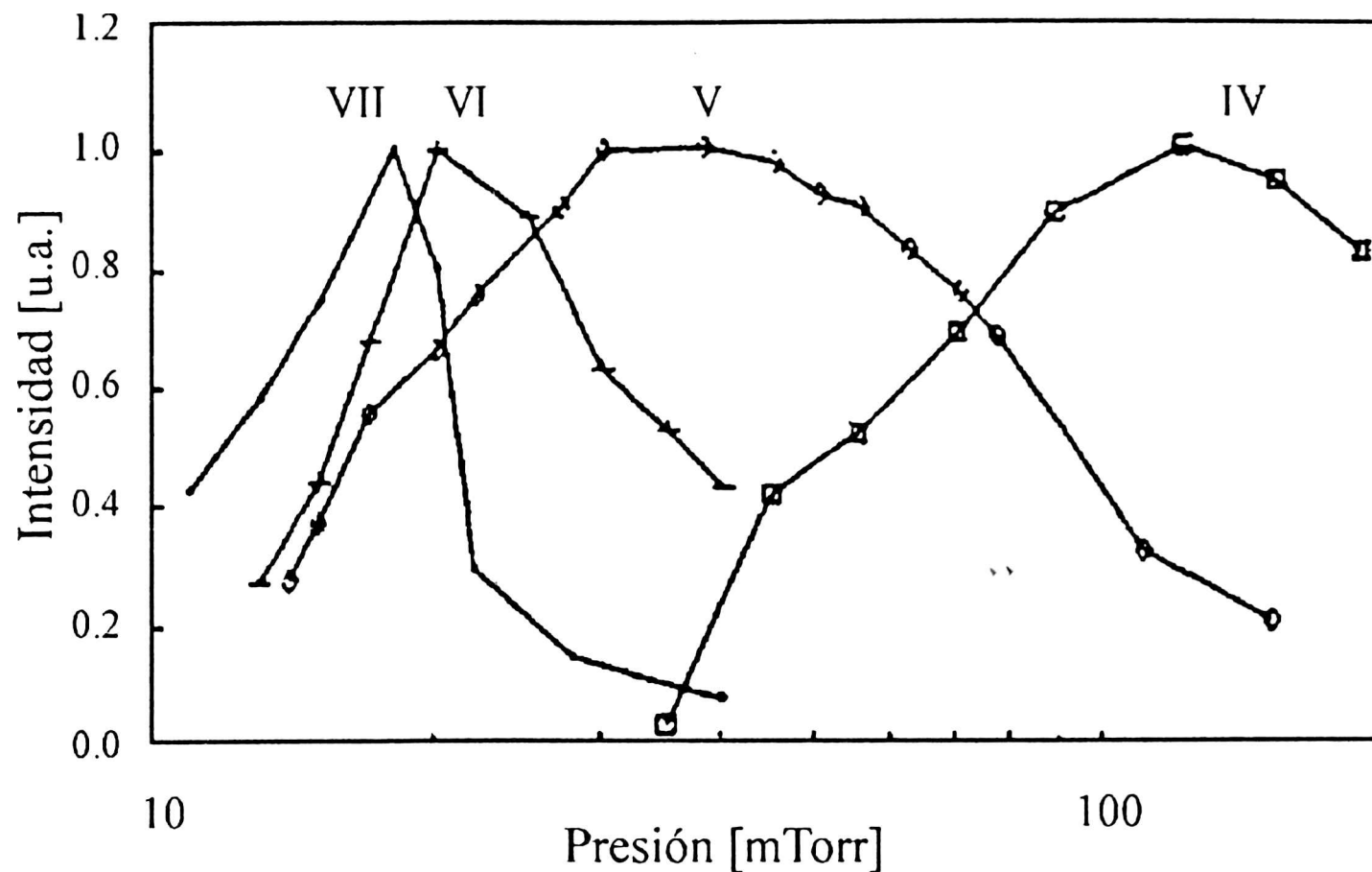


Figura 3.6: Gráfico de intensidad en función de la presión para: 3310.4 Å (Xe IV), 5374.97 Å (Xe V), 3671.81 Å (Xe VI), 3635.5 Å (Xe VII). Ref: [26].

presión y la tensión), de la manera usual [55]. Las intensidades correspondientes a los iones más altos alcanzan su máximo a presiones menores que los más bajos dado que, la energía necesaria para excitarlos es mucho mayor que en los otros, como fue reportado en trabajos previos (Figura 3.6).

En la Figura 3.7 se presenta un registro parcial de la intensidad de algunas líneas para distintas presiones. Este fue obtenido por medio de la digitalización de los registros de las placas fotográficas, por medio del microdensitómetro Grant.

Otro método de asignación iónica que brinda muy buenos resultados se basa en el análisis resuelto en tiempo. En la Ref. [25] se ha utilizado dicho método asignando a las transiciones láseres en el visible más intensas como pertenecientes al Xe IV. Sin embargo, los resultados obtenidos en éste trabajo coinciden con los reportados en [26] y [56], que se las asigna como pertenecientes al Xe V.

El trabajo sistemático mostró que las emisiones pertenecientes al mismo grado iónico bajo las mismas condiciones experimentales presentan una distribución temporal semejante. Además, existe un progresivo aumento con el número iónico, en el retraso temporal del comienzo de la emisión respecto a la corriente.

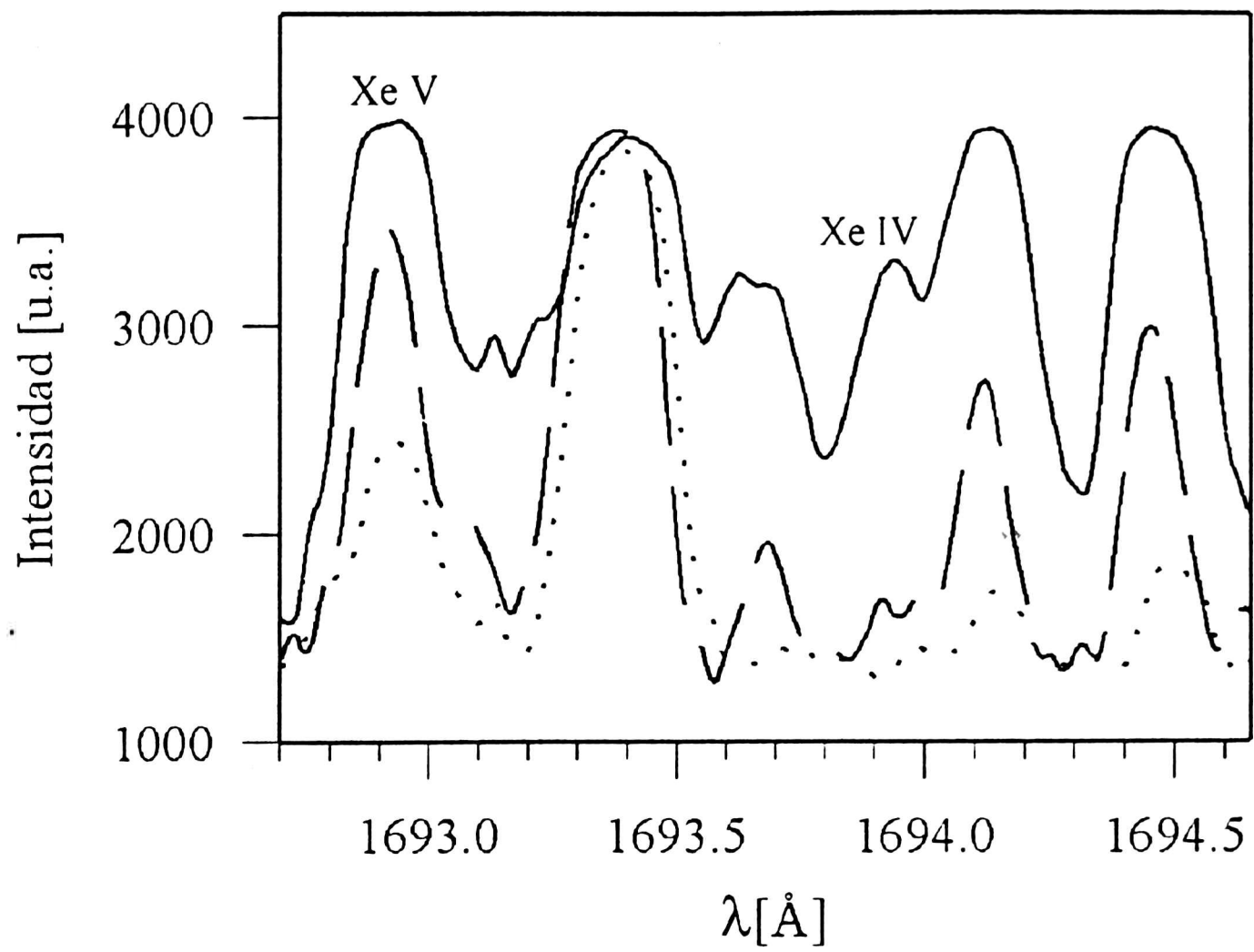


Figura 3.7: Registro densitométrico de la intensidad de emisión en función de  $\lambda$ , para distintas presiones. Línea continua:  $p=50$  mTorr, línea de rayas:  $p=20$  mTorr, línea punteada:  $p=10$  mTorr.

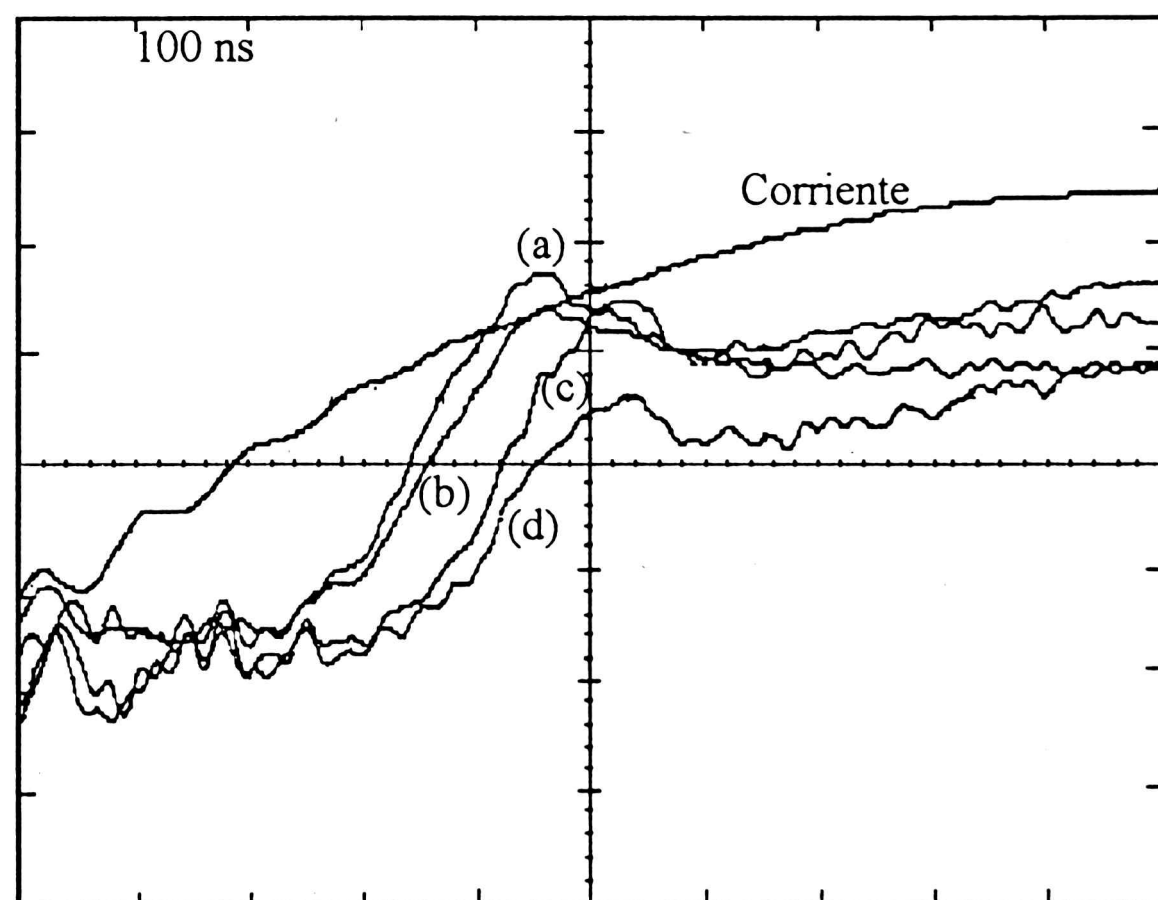


Figura 3.8: Asignación iónica por medio de análisis temporal: Xe VII: (a) 3834 Å, (b) 3645 Å; Xe VIII: (c) 3350 Å, (d) 3246 Å

### 3.2. Resultados experimentales

Para realizar la asignación iónica de las transiciones que dan lugar a la emisión láser se utilizaron ambos métodos, aunque los resultados obtenidos por medio de espectroscopía resuelta en tiempo son muchas veces más claros. El procedimiento utilizado es el que se describe a continuación:

Se obtiene emisión estimulada de la transición a analizar y se selecciona por medio del monocromador. Luego, bajo las mismas condiciones experimentales, se retira el espejo de acople al exterior y se observa el comportamiento de la emisión espontánea correspondiente. Finalmente, ésta se compara con la de otras transiciones que ya fueron clasificadas y que son fácilmente localizables por sus características: que no tenga otra línea cercana perteneciente a otro ion, que sea intensa, etc.

En la Figura 3.8 se observa la distribución temporal de dos transiciones clasificadas del Xe VII, otra que pertenece al Xe VIII y la  $\lambda = 3246 \text{ \AA}$ . De la figura se deduce que pertenece también al Xe VIII y que corresponde a la transición clasificada como perteneciente a éste ion por Wang *et al.* [57]. Esta se encontraba asignada como perteneciente al Xe IV posiblemente porque existe una transición muy cercana perteneciente a una especie de menor grado iónico.

La asignación iónica mostró la presencia de iones desde el Xe II (una vez ionizado) hasta el Xe IX. Bajo nuestras condiciones experimentales, no se observaron emisiones pertenecientes al xenón neutro (Xe I).

Los métodos semiempíricos proporcionan un recurso para la investigación de la aproximación y consistencia de los resultados teóricos y experimentales. Partiendo del supuesto que las interacciones entre las configuraciones no es fuerte, los parámetros de energía pueden estimarse por interpolación o extrapolación de curvas que serán suaves (polinómicas). Estas se construyen a partir de los parámetros conocidos que pertenecen a la misma secuencia isonuclear, isoelectrónica y homóloga (o serie de Rydberg) [33], [55]. Una desviación de las regularidades es un indicador de algún agente perturbante. Los sistemas atómicos isoelectrónicos son aquellos que tienen la misma estructura electrónica y difieren en su carga nuclear  $Z$ , los sistemas homólogo o isoiónicos son los que pertenecen a la misma columna en la tabla periódica pero con el mismo grado de ionización como por ejemplo: Ne V, Ar V, Kr V, Xe V. La secuencia isonuclear es la que posee el mismo  $Z$  pero distinta carga neta: Xe I, Xe

II, Xe III, etc; en éste caso se verifica por ejemplo que las energías promedio de cada configuración siguen una tendencia similar con respecto al potencial de ionización del ion.

### 3.2.3 Distribución temporal de la emisión espontánea

La evolución temporal de las poblaciones fue analizado por medio de un análisis espectroscópico resuelto en tiempo. Se estudió la emisión de cerca de 100 líneas espontáneas en la región UV-visible. Para cada uno de los iones se incluyó además un extenso estudio de la emisión espontánea de las transiciones que dan lugar a la emisión láser.

Se observaron diversos comportamientos según las condiciones experimentales. En general para todos los iones, la emisión presenta un máximo durante la crecida de la corriente y luego disminuye a valores más pequeños. Cuando la presión es incrementada, aumenta el retraso en la aparición de la emisión y sigue el comportamiento general del pulso de corriente. No se observaron diferencias apreciables en la evolución temporal para líneas pertenecientes al mismo grado iónico. Resultados similares fueron observados para transiciones pertenecientes a los demás iones. En la Figura 3.9 se observan resultados típicos para una transición perteneciente al Xe V y bajo condiciones de descarga en las que se obtiene emisión estimulada. Es importante mencionar que se mantuvo fija la tensión en el fotomultiplicador para poder comparar las distribuciones.

Aumentar la tensión de descarga es equivalente a disminuir la presión, puesto que en ambos casos se aumenta la energía de excitación. Manteniendo entonces la presión constante y aumentando la tensión se observan comportamientos similares al del caso anterior, como se muestra en la Figura 3.10. Sin embargo en la curva (a) de la Figura 3.9 se alcanza un valor relativo de intensidad menor. Esto se debe a que a pesar de aumentar la energía de excitación debido al incremento en el camino libre medio de los electrones, es menor el número de iones disponibles para emitir. En cambio un aumento en la tensión se traduce directamente en un aumento en la energía media de los electrones y en consecuencia de la emisión.

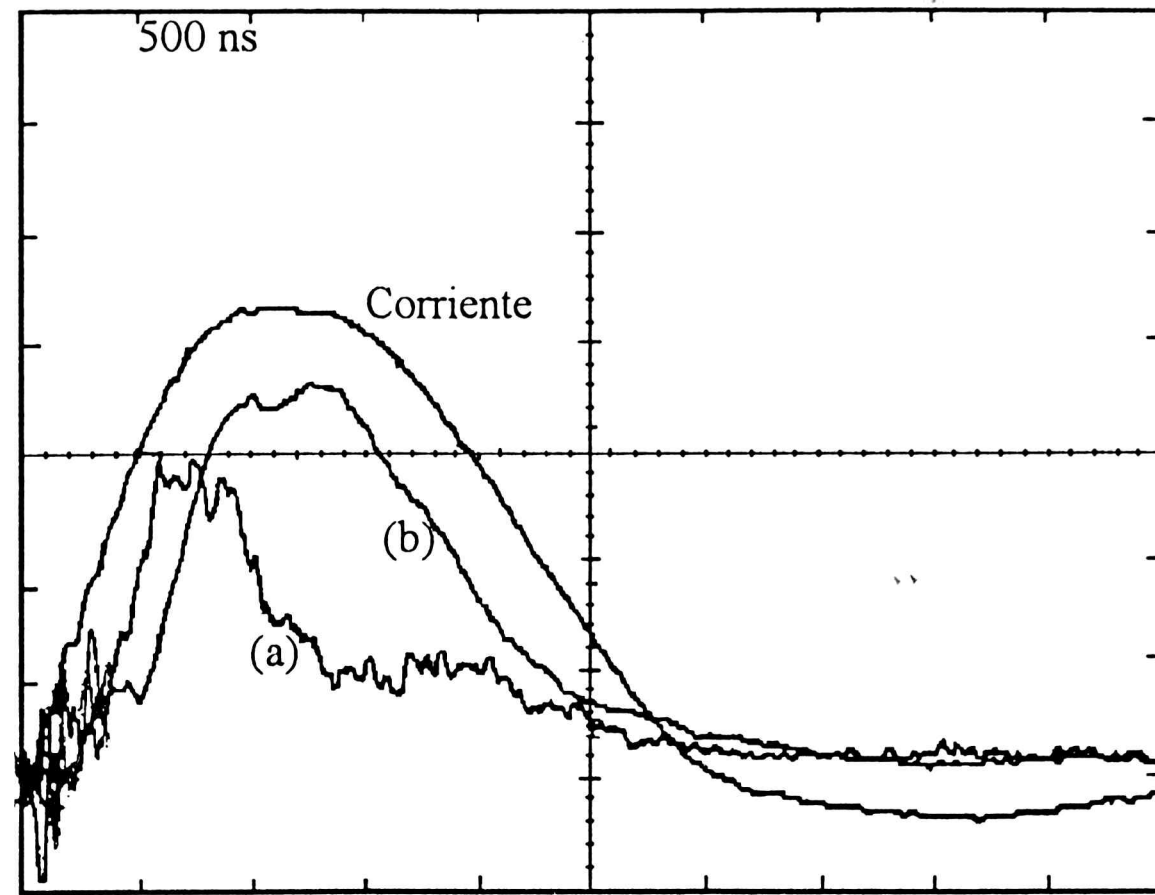


Figura 3.9: Comportamiento temporal de la emisión espontánea para distintas presiones de la  $\lambda = 3803.26 \text{ \AA}$  (Xe V). (a)  $p = 20 \text{ mTorr}$ , (b)  $p = 40 \text{ mTorr}$ .  $I_{\text{max}} = 1.4 \text{ kA}$ . Diámetro del tubo: 5 mm. Capacidad total: 420 nF.

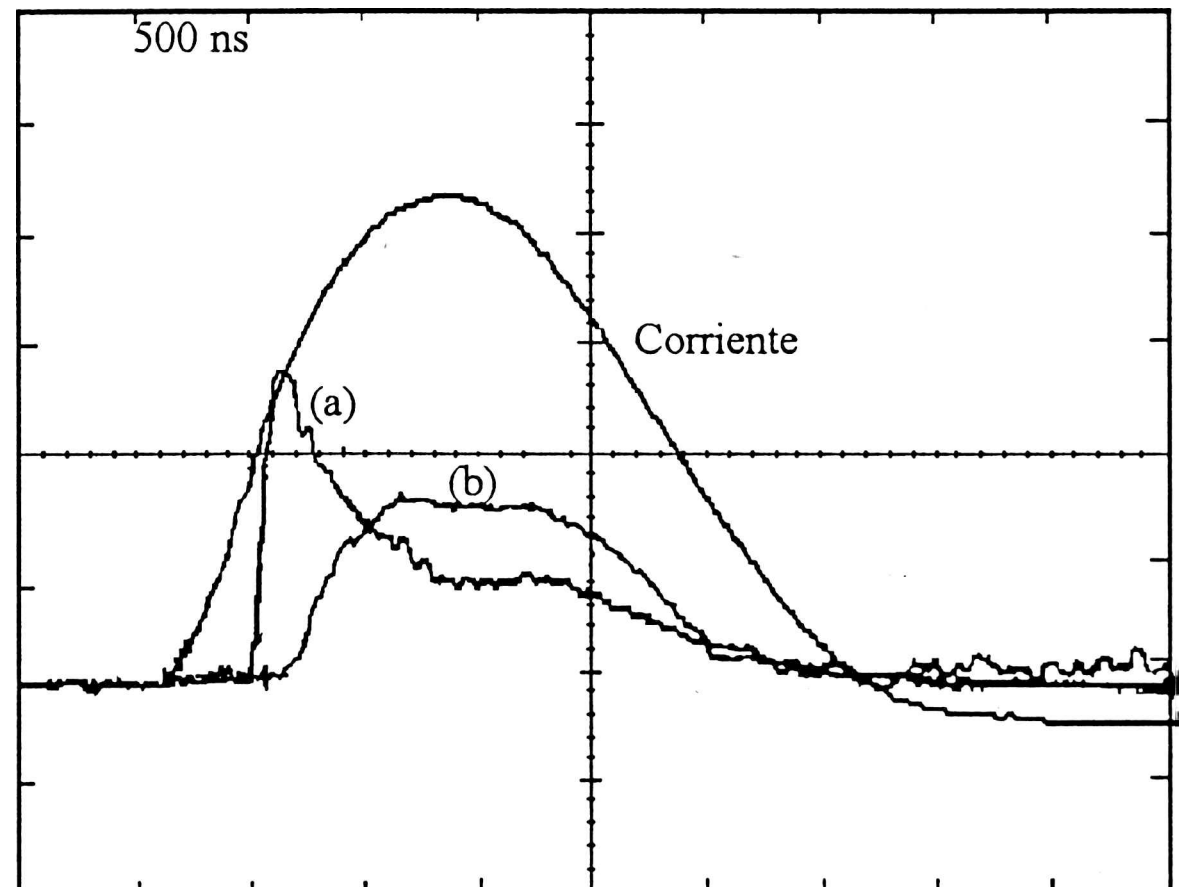


Figura 3.10: Emisión espontánea para distintas tensiones de descarga para la  $\lambda = 3645.48 \text{ \AA}$ , transición correspondiente al Xe VII: (a)  $V = 17 \text{ kV}$ ., (b)  $V = 12 \text{ kV}$ ; presión: 20 mTorr, corriente máxima: 1.6 kA, correspondiente al caso de menor tensión. Diámetro interno del tubo 5 mm, tensión total de descarga: 420 nF.



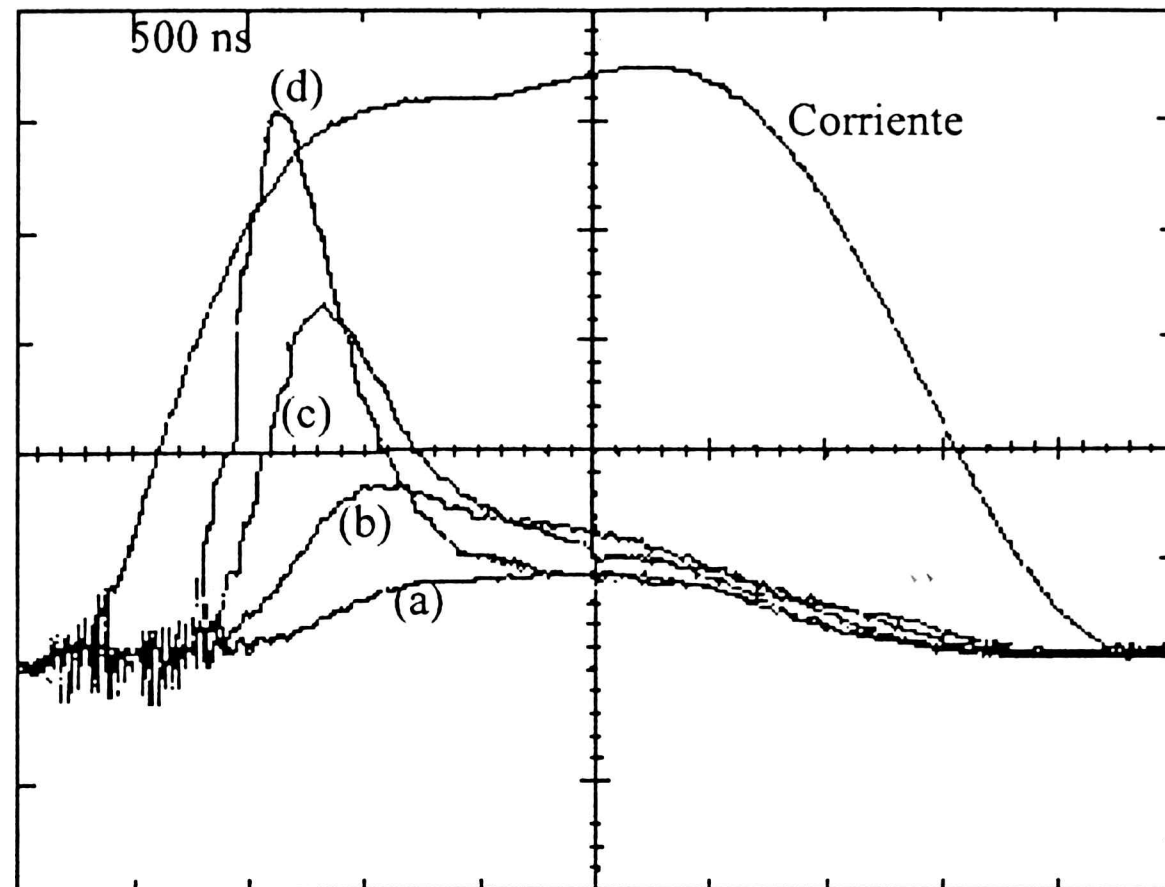


Figura 3.11: Emisión espontánea de la línea 4954.13 Å para diferentes corrientes: (a) 0.9 kA, (b) 1.1 kA, (c) 1.6 kA, (d) 2.1 kA. La corriente corresponde al último caso. Presión de llenado: 10 mTorr, diámetro interno del tubo: 3 mm; capacidad total 400 nF.

Comportamientos análogos fueron observados para los distintos iones. En la Figura 3.11 se presentan los resultados de un estudio detallado para distintas tensiones de descarga para la transición espontánea  $\lambda = 4954.48$  Å, que se clasificó como perteneciente al Xe V [61] y que da lugar a una de las emisiones láser más intensas para éste gas.

Se observó que bajo las condiciones de descarga a las que aparece la emisión láser, el máximo observado de emisión aparece durante la crecida de la corriente (Figura 3.12) y se incrementa con el grado iónico. El retraso entre los máximos varía entre 40 y 150 ns entre iones consecutivos, dependiendo de las condiciones experimentales. Al aumentar la tensión de descarga, todos los iones se desplazan hacia el inicio de la corriente disminuyendo el retraso entre los máximos de iones consecutivos. Se observó también un retraso en el comienzo de la emisión que se incrementa con el grado iónico. La Figura 3.12 muestra el mencionado comportamiento para varios de los iones estudiados junto con la corriente, que se muestra como referencia. Aun los iones más bajos presentan un retraso en el comienzo de su emisión respecto a la

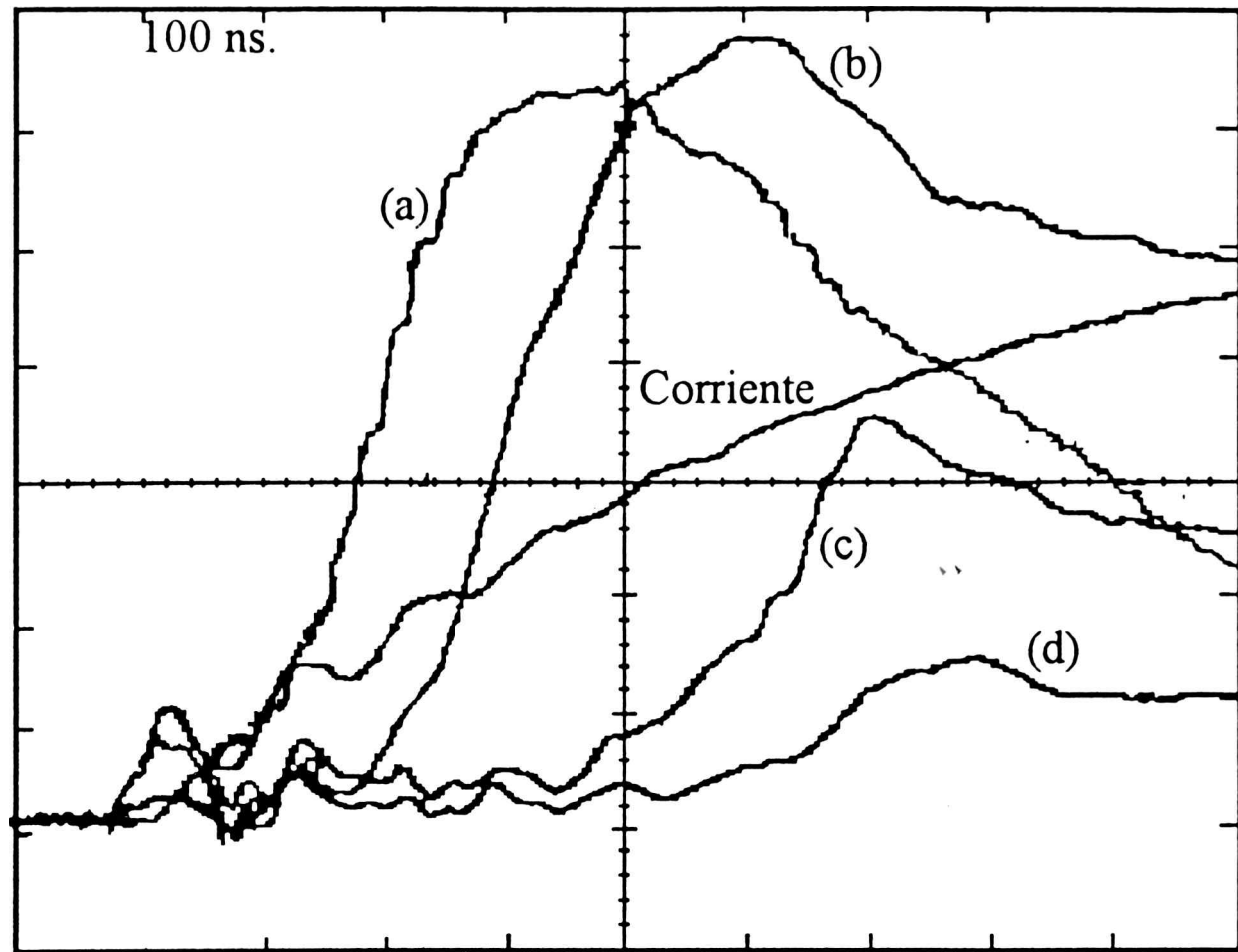


Figura 3.12: Retraso temporal observado para los distintos iones: (a)  $\lambda = 5401.01 \text{ \AA}$  (Xe III), (b)  $\lambda = 3330.84 \text{ \AA}$  (Xe V), (c)  $\lambda = 3645.48 \text{ \AA}$  (Xe VII), (d)  $\lambda = 3510.42 \text{ \AA}$  (Xe VIII); presión: 15 mTorr, corriente máxima 1.2 kA. Diámetro interno del tubo 5 mm., capacidad total 420 nF

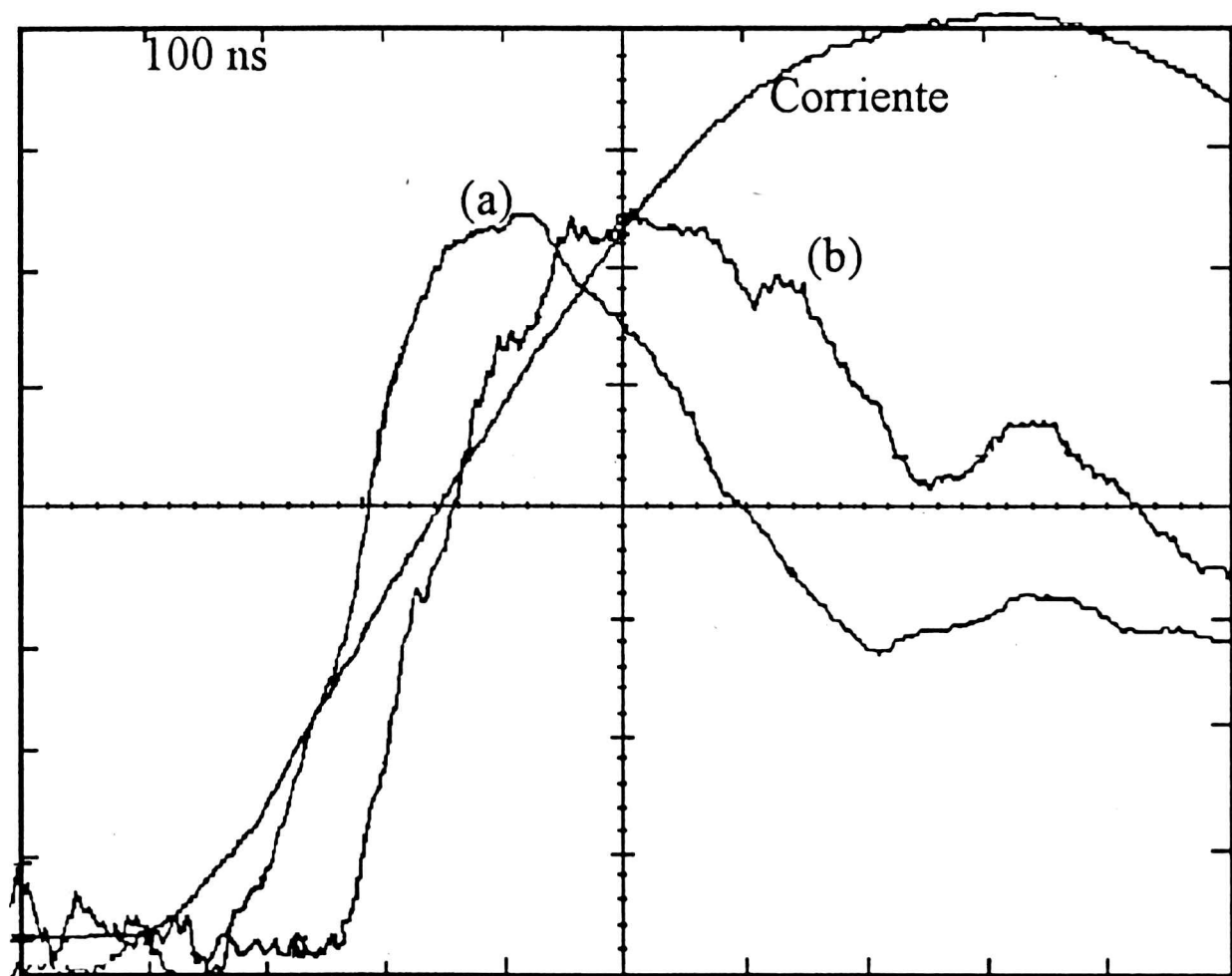


Figura 3.13: Retraso en la aparición de la emisión para iones bajos. (a)  $\lambda = 5313.74 \text{ \AA}$  (Xe II), (b)  $\lambda = 5332.01 \text{ \AA}$  (Xe IV);  $p=5 \text{ mTorr}$ ,  $I_{\text{max}} = 1.5 \text{ kA}$ , capacidad total: 380 nF,  $D_{\text{tubo}} = 3 \text{ mm}$ .

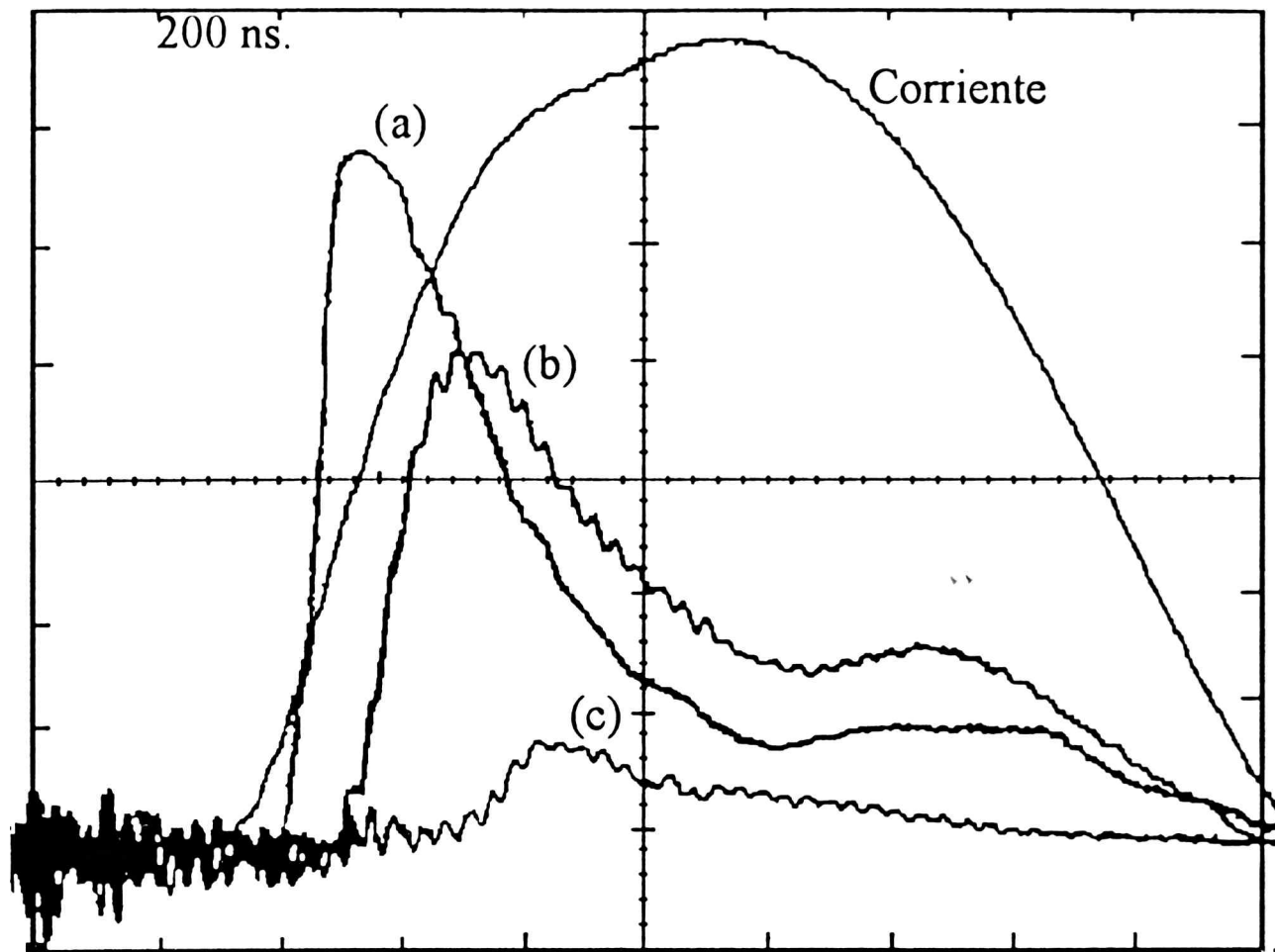


Figura 3.14: Emisión espontánea para distintos iones: (a) Xe III, (b) Xe V, (c) Xe VII;  $p = 15$  mTorr,  $I_{\max} = 1.4$  kA,  $D_{tubo} = 3$  mm. Capacidad total: 140 nF

corriente, como se muestra en la Figura 3.13 para el xenón una vez ionizado.

Bajo las mismas condiciones de descarga, los distintos iones presentaron diferentes comportamientos. La Figura 3.14 muestra la distribución temporal para distintas especies iónicas. Las especies más bajas presentaron durante la crecida de la corriente, una disminución relativa en su intensidad, mayor que los grados iónicos más grandes. Este fenómeno está relacionado con el balance entre las distintas tasas de excitación y desexcitación a que están sometidos cada uno de los iones como veremos en el Capítulo 4.

Luego que la corriente alcanza su máximo, la emisión muestra o un equilibrio temporal o una segunda crecida. Esta última característica se observó especialmente en los iones más bajos, resultados que están en acuerdo por lo observado previamente por Duchowicz *et al* [26].

### 3.2.4 Distribución temporal de la emisión láser

Se realizó un extensivo estudio en la región visible y ultravioleta hasta 2000 Å de la emisión del láser iónico de xenón para líneas correspondientes a distintos iones (Xe III - Xe VIII). Esta incluyó una búsqueda de nuevas transiciones no reportadas previamente con xenón espectroscópicamente puro y con una mezcla de He-Xe (90 % - 10 % en volumen). La emisión láser se focalizó hacia el espectrógrafo de montaje Ebert de 3.4 m de distancia focal y se registró por medio de placas según la región espectral. En la misma placa, pero a distinta altura de exposición se registró el espontáneo correspondiente. Este procedimiento se realizó con distintos pares de espejos para cada región estudiada y bajo distintas condiciones experimentales. En la Tabla 3.1 se presenta un listado de las transiciones observadas, medidas por medio del microdensitómetro y su correspondiente clasificación o asignación, y su intensidad espontánea. Teniendo en cuenta que la dispersión del espectrógrafo a primer orden es de 4.8 Å / mm y que el comparador tiene una precisión de un micrómetro, es posible medir las líneas con un error no mayor a  $10^{-2}$  Å.

Por otra parte se hizo un análisis de la emisión temporal del láser correspondientes a las líneas más intensas utilizando el espectrógrafo de montaje Ebert de 0.5 m de distancia focal (monocromador). En la Tabla 3.1 también se incluye el listado de las líneas que fueron estudiadas de ésta forma. Para cada línea se estudió su comportamiento en función de los distintos parámetros experimentales y la emisión temporal de su espontáneo al retirar los espejos con los que se genera la cavidad.

Dependiendo de la alineación de los espejos y de las condiciones experimentales, varios iones pueden lasear simultáneamente. Bajo éstas condiciones, el comienzo en la emisión estimulada presentó un retraso creciente con el grado iónico respecto del comienzo de la corriente, en correlación con lo observado para la emisión espontánea. En efecto, para que aparezca la emisión láser es necesario primero poblar al ion correspondiente. Por ésto, es esperable que la emisión perteneciente al grado iónico mayor tenga también un retraso temporal más grande, como se observa en la Figura 3.15.

Cerca del umbral algunas de las líneas presentaron oscilaciones en el tiempo.

### 3.2. Resultados experimentales

$\lambda$ [Å]	Clas / Asig	Temp	Int.[u.a]	$\lambda$ [Å]	Clas / Asig	Temp	Int. [u.a.]
2315.43	VII clas <sup>1</sup>	*	10	3745.71	III clas	-	8
2477.34	V	-	1	3781.05	III clas	-	12
2526.66	V	-	3	3803.26	V clas	*	11
2691.74	V	-	4	3973.01	V clas	-	8
2767.58	IV clas	-	10	4060.45	III clas	*	10
3079.72	IV clas	*	14	4305.69	V clas	*	15
3246.99	VIII clas <sup>1</sup>	*	15	4558.49	V clas	-	11
3305.96	V clas	*	16	4954.13	V clas	*	15
3330.84	V clas	*	16	5007.80	V clas	*	12
3350.03	VIII clas <sup>1</sup>	*	14	5159.08	V clas	*	15
3454.27	III clas	*	8	5260.19	V clas	*	15
3510.42	VIII clas <sup>1</sup>	-	12	5352.92	V clas	*	16
3645.48	VII clas <sup>1</sup>	*	11	5394.62	V clas	*	15
3669.18	V	*	10	5955.67	V clas	*	12

Tabla 3.1: Transiciones láser observadas correspondientes a distintos grados iónicos e intensidades espontáneas.

(1) Corresponden a transiciones ya clasificadas pero reportadas como láser por primera vez a dichas transiciones.

(\*) Transiciones estudiadas temporalmente.

Esto es especialmente cierto para los iones más altos. En la Figura 3.16 se observa el comportamiento temporal de la transición  $\lambda = 3350.03$  Å correspondiente al Xe VIII junto con su correspondiente espontáneo y el pulso de corriente como referencia. Este fenómeno ocurre durante la región temporal alrededor del pico de espontáneo. Después de esto, la población del nivel superior decae junto con la emisión láser. A excepción del Xe VIII, no es fácil encontrar las condiciones experimentales adecuadas para su observación. Sin embargo se verificó que es muy sensible a la alineación del sistema. En la Figura 3.17 se muestra la dependencia de la emisión con la alineación de los espejos, para una transición que pertenece al Xe V.

Se efectuó además un análisis de la evolución temporal del láser a partir de

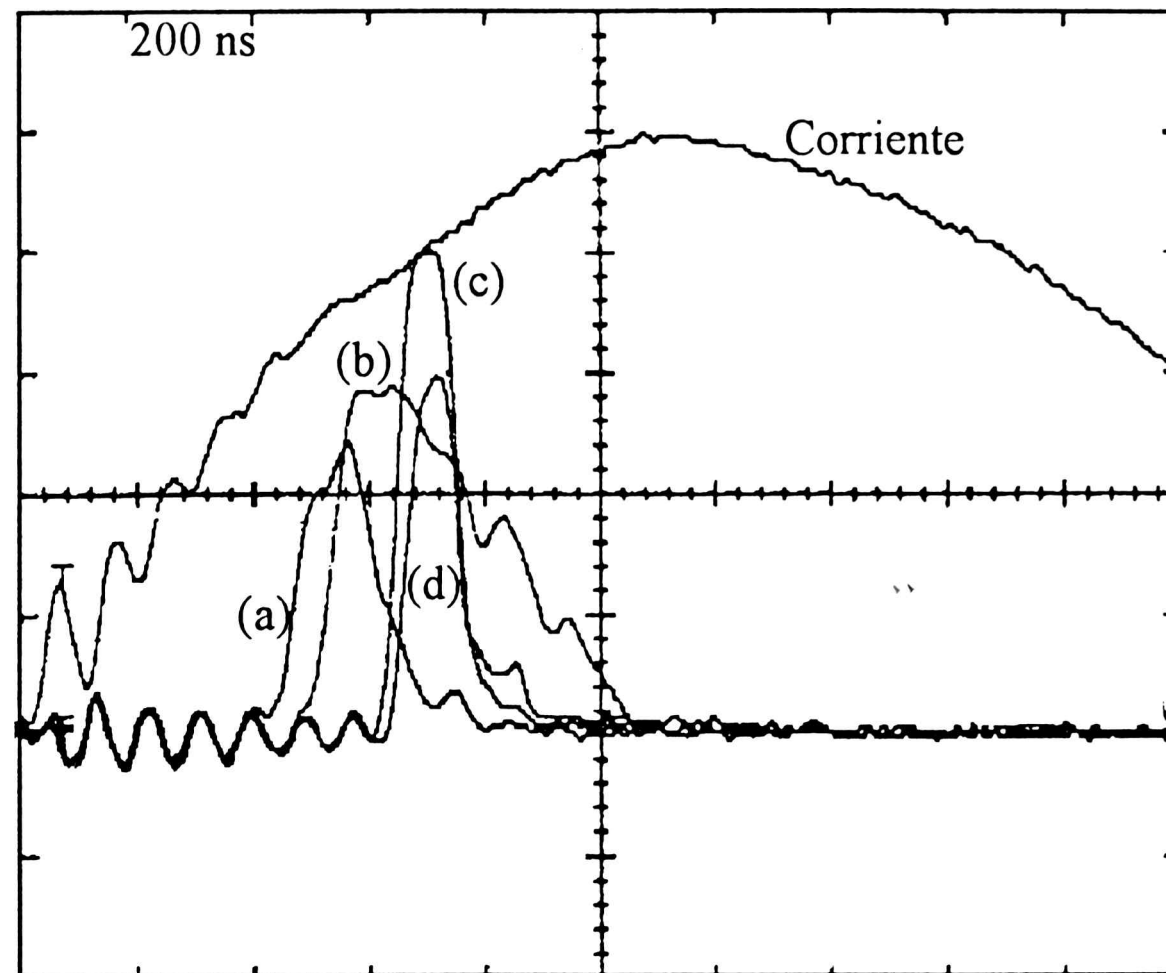


Figura 3.15: Retraso en la aparición de la emisión láser para distintos iones: (a)  $\lambda = 3803.26 \text{ \AA}$  (Xe V), (b)  $\lambda = 3645.48 \text{ \AA}$  (Xe VII), (c)  $\lambda = 3350.03 \text{ \AA}$  (Xe VIII), (d)  $\lambda = 3246.99 \text{ \AA}$  (Xe VIII);  $p = 30 \text{ mTorr}$ ,  $I_{\text{max}} = 2 \text{ kA}$ ,  $D_{\text{tubo}} = 5 \text{ mm}$ , capacidad total:  $420 \text{ nF}$ .

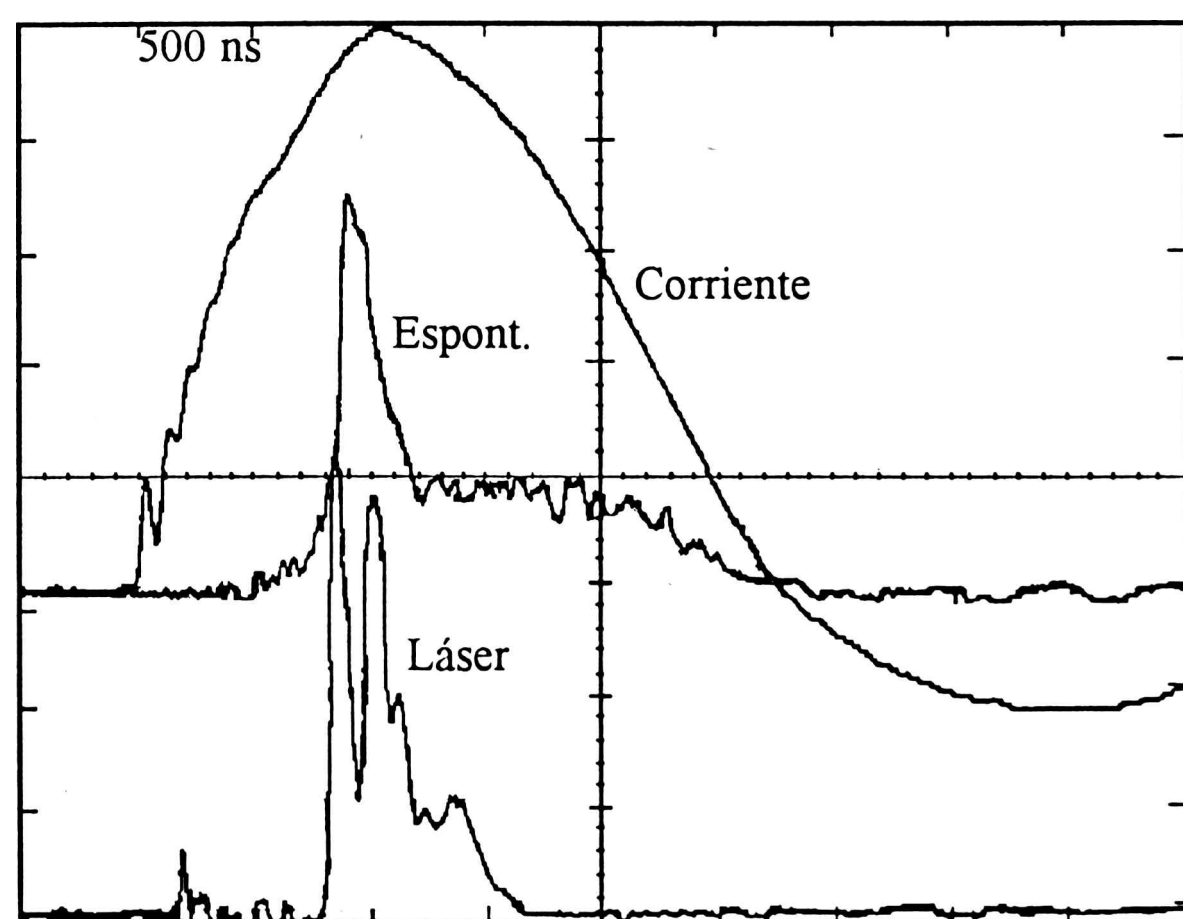


Figura 3.16: Oscilaciones de la emisión láser para la transición  $3350.03 \text{ \AA}$  (Xe VIII);  $p = 12 \text{ mTorr}$ ,  $I_{\text{max}} = 1.8 \text{ kA}$ ,  $D_{\text{tubo}} = 5 \text{ mm}$

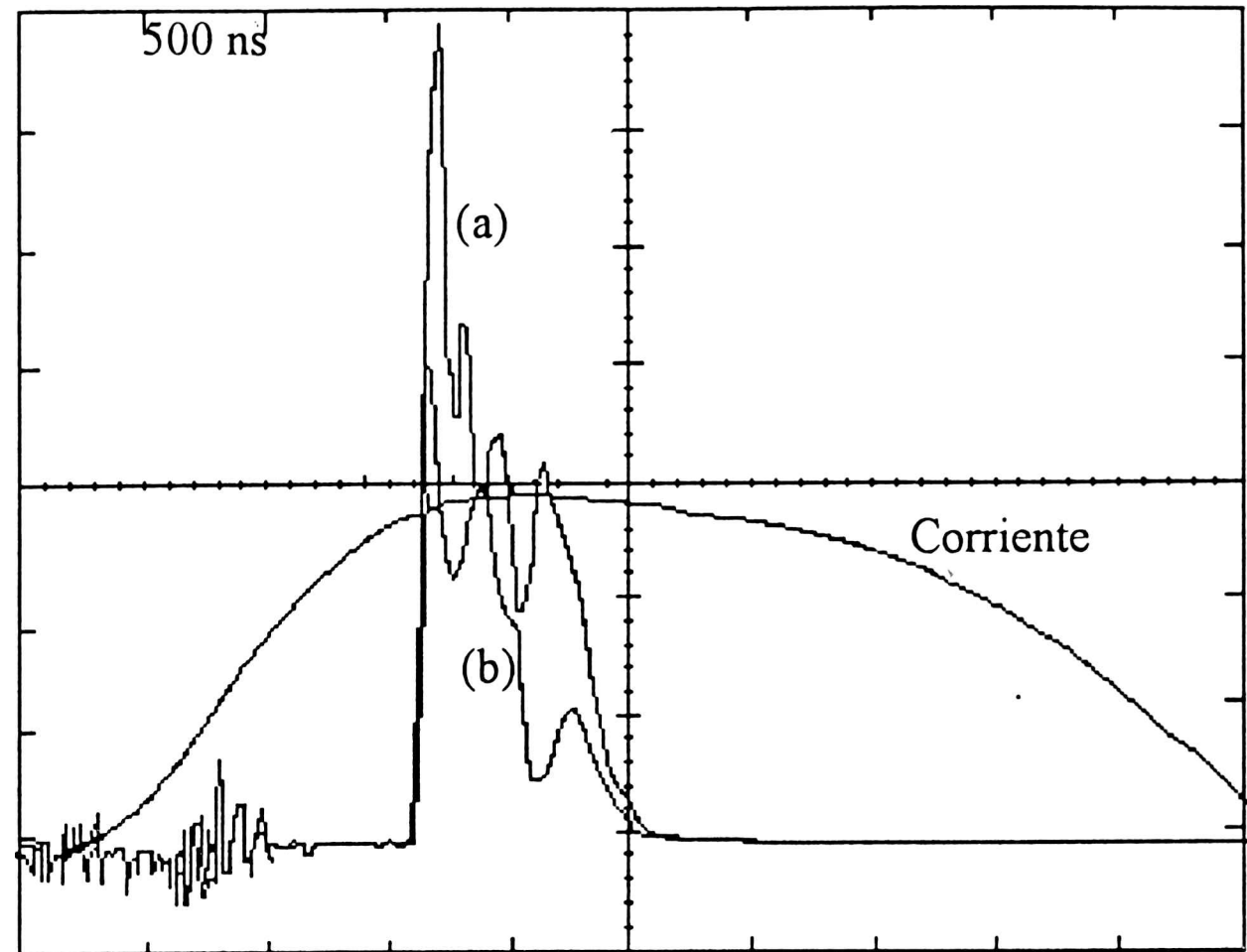


Figura 3.17: Dependencia de las oscilaciones de la emisión láser con la alineación para la  $\lambda = 4954.13$  Å (Xe V);  $p = 10$  mTorr,  $I_{\max} = 1.2$  kA,  $D_{tubo} = 3$  mm. Capacidad total: 380 nF.

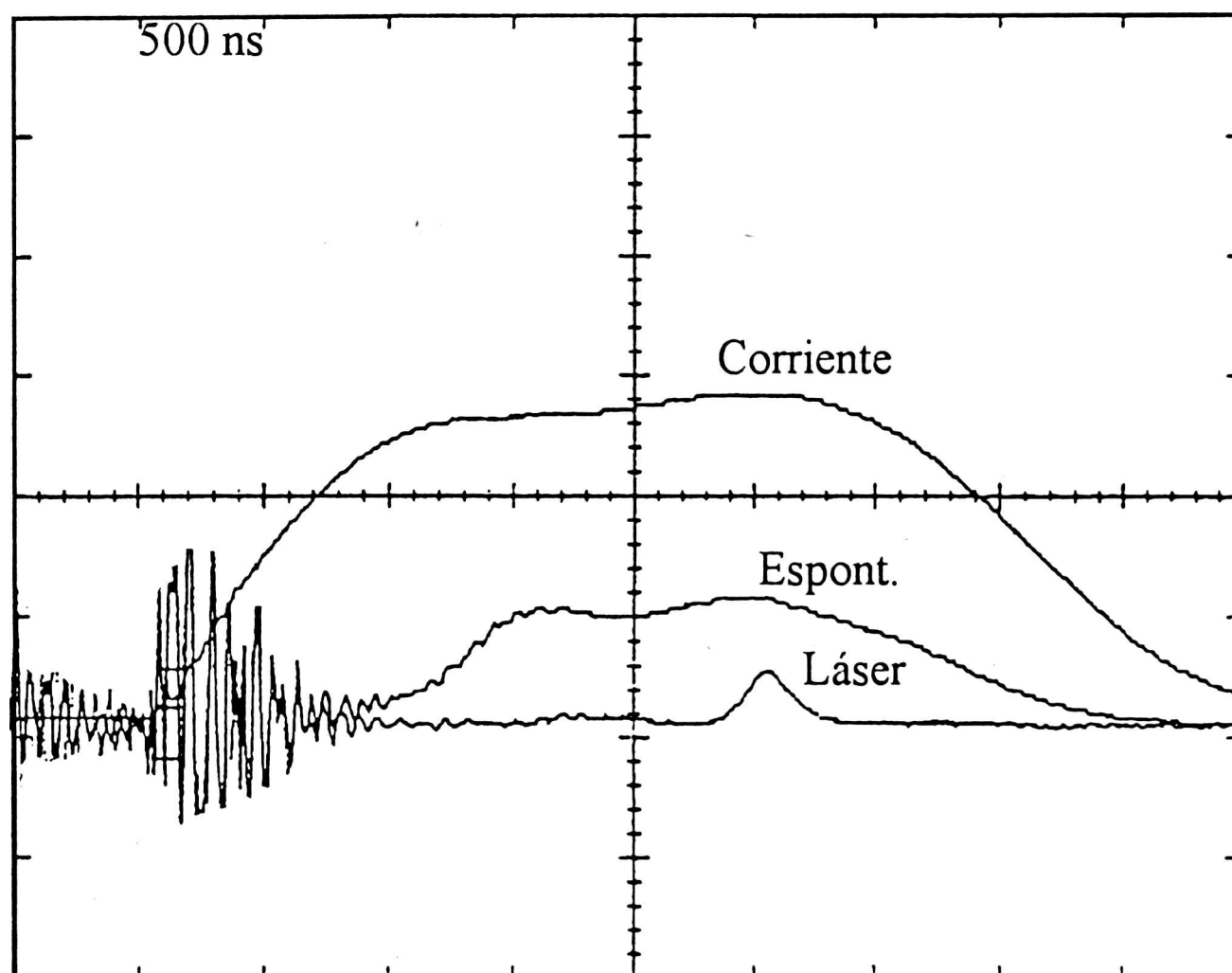


Figura 3.18: Emisión láser cercana al umbral para la  $\lambda = 5352.92$  Å (Xe V).  $I_{\max} = 620$  A,  $p = 20$  mTorr.  $D_{tubo} = 3$  mm, capacidad total 380 nF.

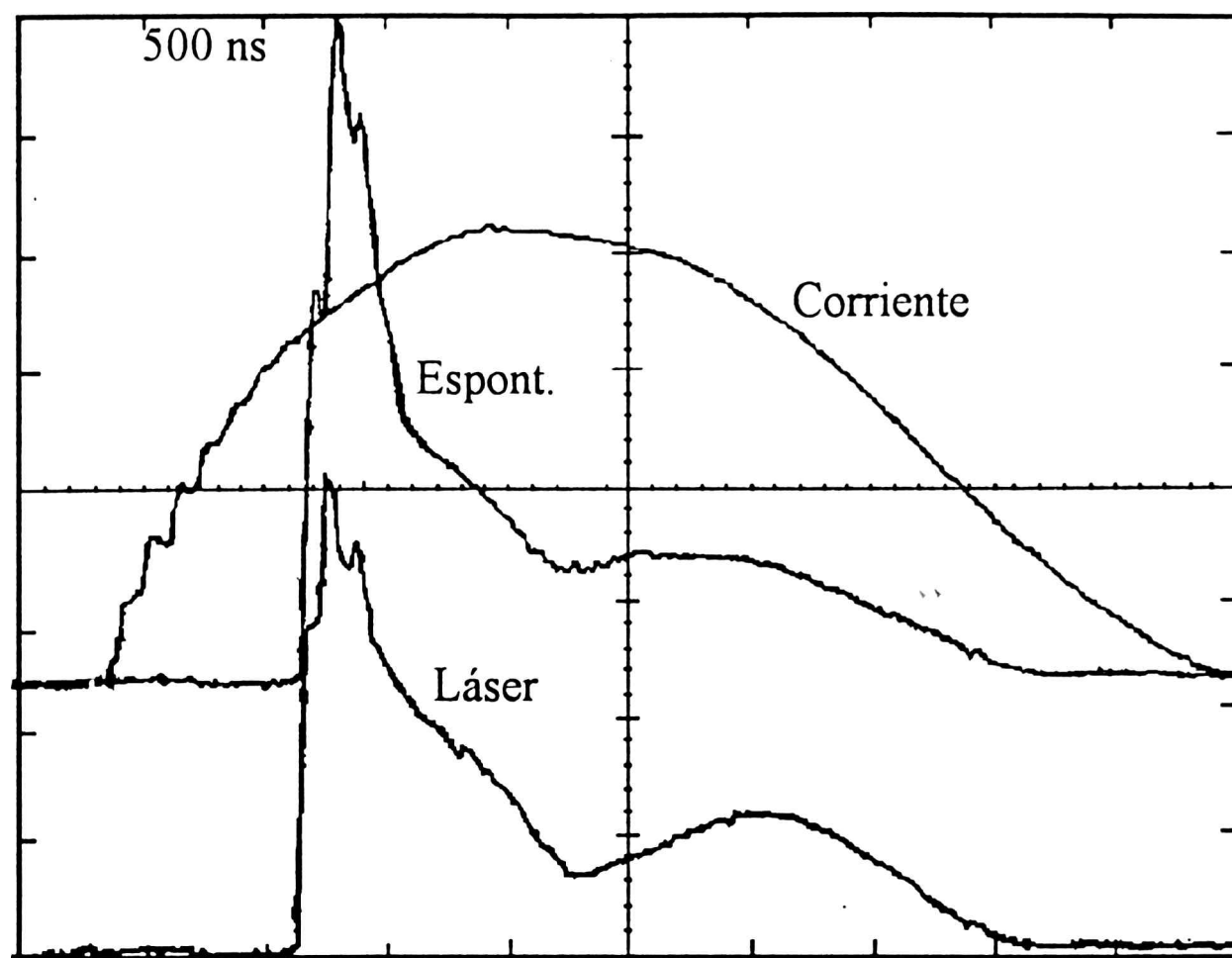


Figura 3.19: Emisión espontánea y láser para la  $\lambda = 3645.48 \text{ \AA}$  (Xe VII).  $p = 10 \text{ mTorr}$ ,  $I_{\text{max}} = 1.6 \text{ kA}$ ,  $D_{\text{tubo}} = 5 \text{ mm}$ . Capacidad total:  $420 \text{ nF}$ .

su umbral. Al incrementar la energía de excitación hasta alcanzarlo, se observó que la distribución temporal de las líneas consistía en un único pulso cercano al máximo del espontáneo y la corriente, como se muestra en la Figura 3.18 para una línea visible perteneciente al Xe V. Al aumentar la energía de excitación se manifestó una distribución de doble pulso, fenómeno que también fue reportado en otros láseres pulsados de gases nobles.

El análisis de la emisión estimulada junto con la espontánea mostró que bajo determinadas condiciones, la primera se correlaciona con el comportamiento general de la segunda. Este fenómeno es mostrado en la Figura 3.19 para la línea  $3645.48 \text{ \AA}$ , perteneciente al Xe VII en la que se observa un comportamiento similar del espontáneo y del láser.

En general todas las transiciones mostraron una distribución temporal de doble pulso cerca del umbral del láser, cuando la emisión espontánea correspondiente presentaba un pico de intensidad inicial. Sin embargo fue posible obtener doble pulso para el láser aun cuando la distribución temporal del espontáneo era cuasi-plana, como



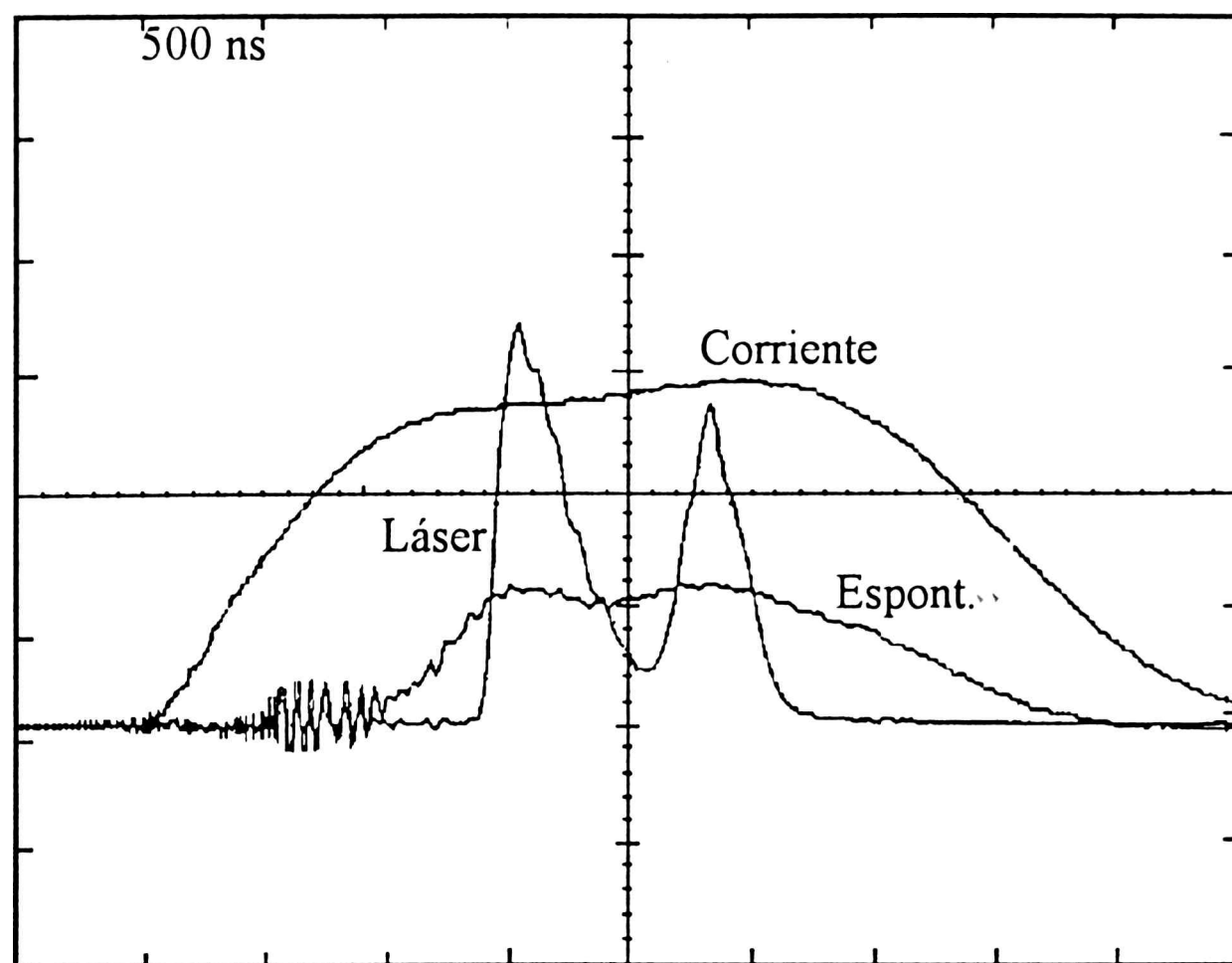


Figura 3.20: Emisión láser y espontánea para la  $\lambda = 5352 \text{ \AA}$  (Xe V),  $I_{\text{max}} = 700 \text{ A}$ ,  $p=20 \text{ mTorr}$ .  $D_{\text{tubo}} = 3 \text{ mm}$ .

se muestra en la Figura 3.20. En este caso el nivel umbral del láser se alcanza cuando la población del nivel superior llega a su máximo (máximo de emisión espontánea).

El estudio simultáneo del espontáneo (que es proporcional a la población del nivel superior) junto con la emisión del láser (que depende tanto del nivel superior como inferior), permiten aclarar lo observado previamente en otros trabajos realizados bajo condiciones similares a éstas (Sampayo [29], Sasaki y Saito [28], Papayouanou [13], etc). Los resultados muestran que el nivel superior es el que gobierna al comportamiento de la emisión estimulada, como se analizará en el próximo capítulo.

Bien por encima del umbral la salida consiste en general de un único pulso en todos los casos analizados. Al retirar el espejo de acople se observó que éste único pico coincide con el máximo de intensidad espontánea que presentan todos los iones bajo éstas condiciones experimentales (con tensiones relativamente altas comparadas a las tensiones umbral del láser). Resultados típicos se pueden ver en la Figura 3.21 para una transición correspondiente al Xe III.

En éste caso la ganancia inicial es muy grande y produce un despoblamiento

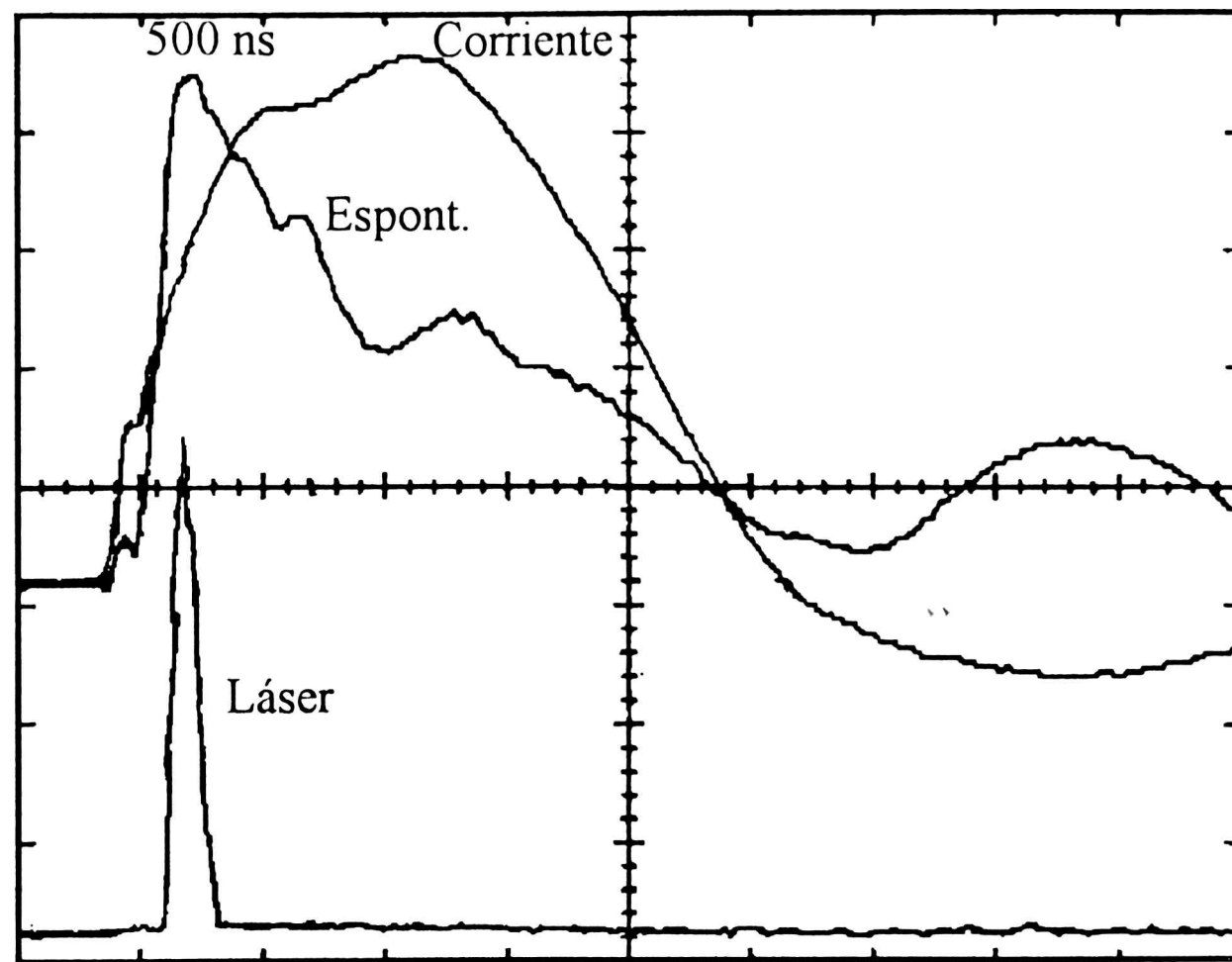


Figura 3.21: Distribución temporal de la emisión láser con su correspondiente espontáneo bien por encima del umbral.  $\lambda = 4060.45 \text{ \AA}$  (Xe III),  $p = 10 \text{ mtorr}$ ,  $I_{\text{max}} = 1.8 \text{ kA}$ ,  $D_{\text{tubo}} = 5 \text{ mm}$ .

del nivel superior láser que usualmente no se recupera para producir nuevamente inversión de población.

Finalmente se observó que la transición  $3645.48 \text{ \AA}$ , que posee una potencia de salida muy grande, tiene un comportamiento superradiante (alta ganancia por paso), como se muestra en la Figura 3.22. Durante la crecida inicial del espontáneo, la intensidad de la emisión con el espejo posterior alineado es mucho mayor que sin éste, mientras que luego no se observan diferencias sustanciales.

Bajo condiciones de excitación algo menores a las de la figura anterior, ésta misma transición mostró un comportamiento cuasicontinuo (Figura 3.23) siguiendo al espontáneo correspondiente. A partir de éstos resultados, es esperable poder conseguir alargar la emisión del láser haciendo lo mismo con el pulso de corriente pero conservando las condiciones de descarga. Este tipo de emisión ya había sido conseguido para transiciones en el visible pertenecientes al Xe V [58].

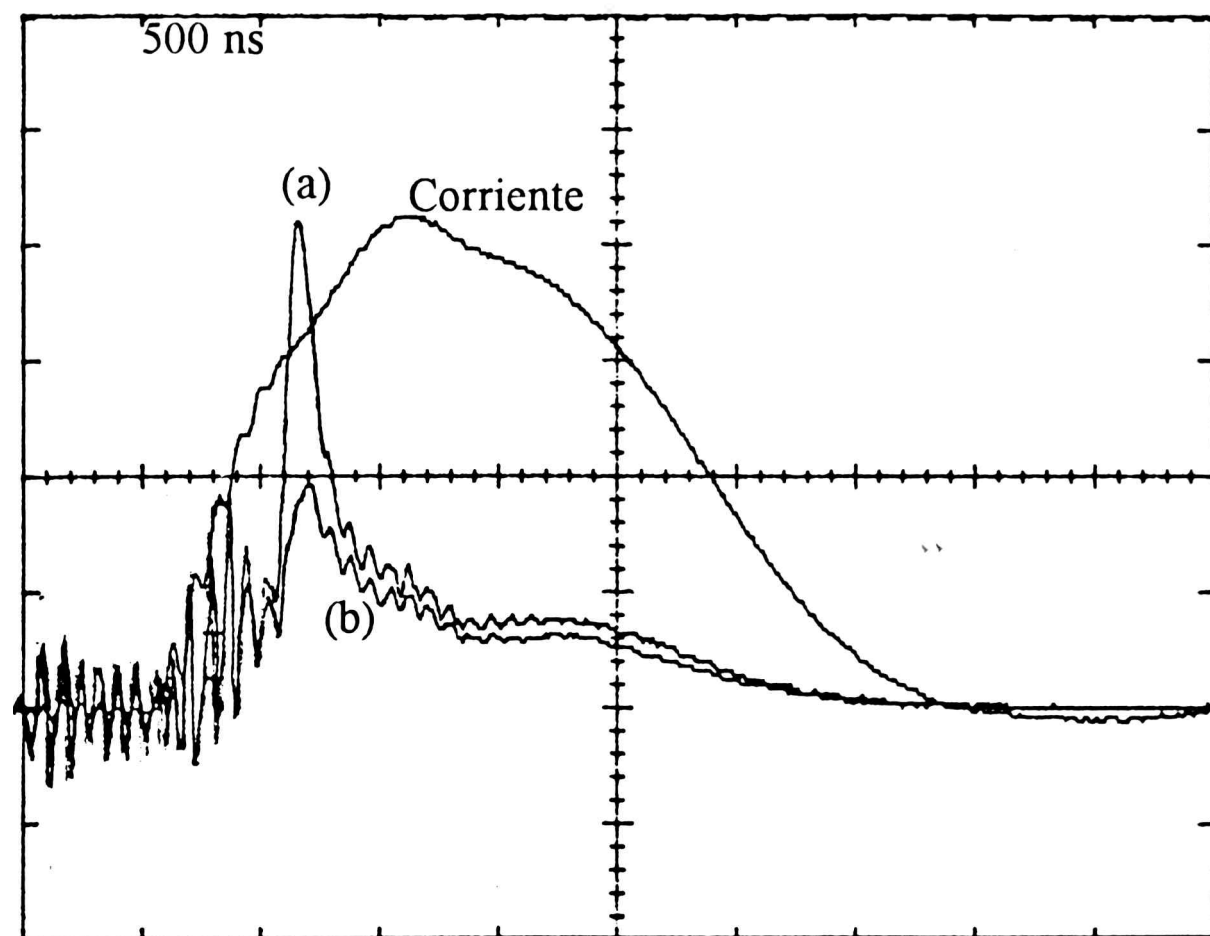


Figura 3.22: Comportamiento superradiante observado para la transición  $3645.48 \text{ \AA}$  (Xe VII). (a) Emisión con espejo reflector; (b) Emisión sin espejo reflector.  $p = 15 \text{ mTorr}$ ,  $I_{\text{max}} = 1.8 \text{ kA}$ ,  $D_{\text{tubo}} = 5 \text{ mm}$ .

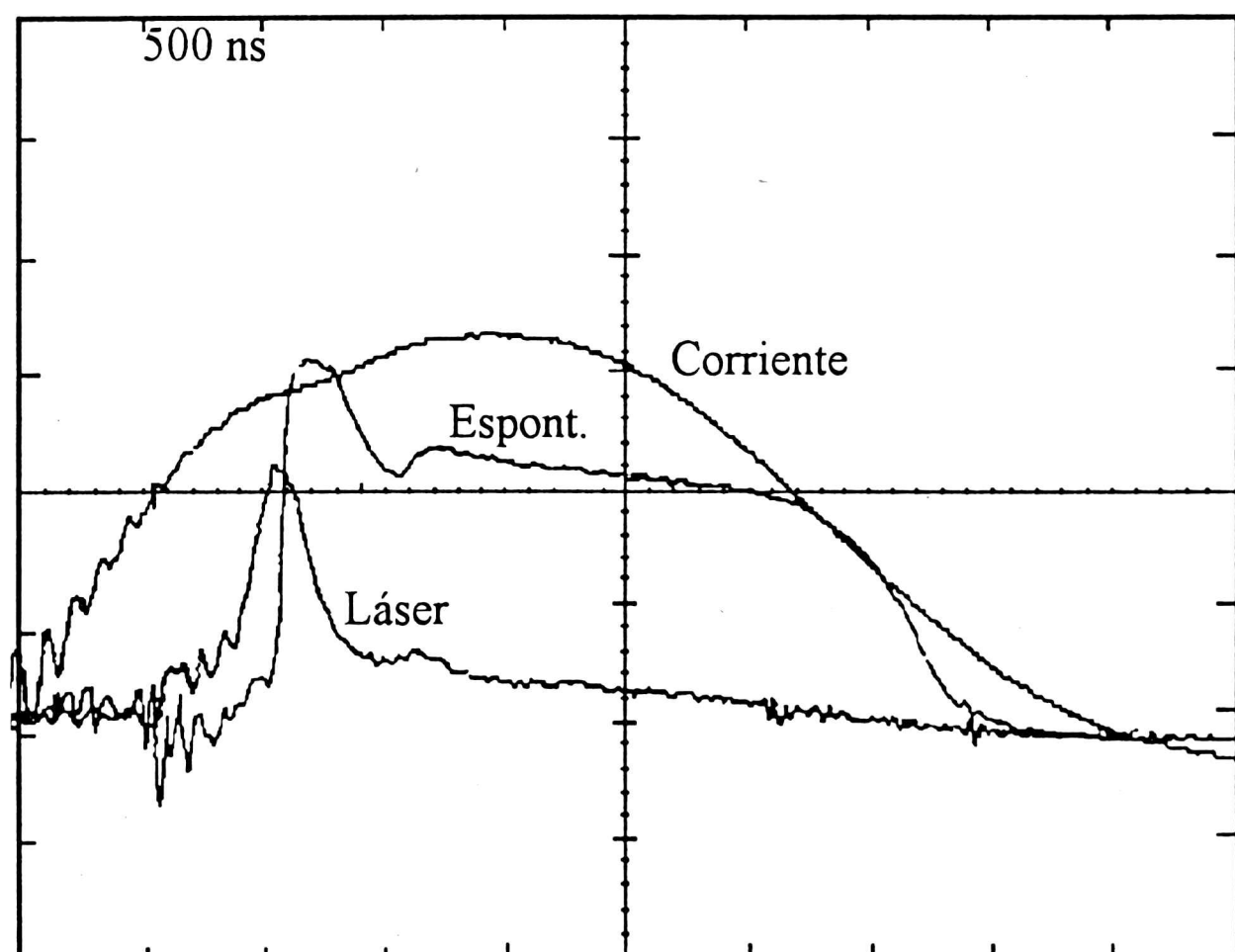


Figura 3.23: Emisión cuasicontinua de la transición  $3645.48 \text{ \AA}$  (Xe VII);  $p = 15 \text{ mTorr}$ ,  $I_{\text{max}} = 1.4 \text{ kA}$ ,  $D_{\text{tubo}} = 5 \text{ mm}$ . Capacidad total:  $420 \text{ nF}$ .

# Capítulo 4

## Análisis Teórico de la Emisión.

Se muestran los resultados del análisis del Xe V, que incluye la clasificación de 13 transiciones que emiten como láser. Se propone un modelo para analizar la emisión tanto espontánea como láser; sus predicciones son comparadas con las medidas realizadas. Se determina la ganancia de las líneas más intensas de manera teórica y experimental.

### 4.1 Determinación de parámetros espectroscópicos

Se exponen los resultados obtenidos por medio de espectroscopía de emisión: análisis espectral de las configuraciones que dan lugar a la emisión estimulada pertenecientes al Xe V, determinación de parámetros espectroscópicos (tiempo de vida y probabilidad de transición) y ancho de las líneas.

#### 4.1.1 Análisis espectral del Xe V

El Xe V pertenece a la secuencia isoelectrónica del Sn I y tiene como configuración fundamental a la  $5s^25p^2$ . Trabajos previos permitieron clasificar 9 niveles de las configuraciones  $5s^25p6p$  [59], 10 niveles de la  $5s^25p4f$  y el faltante de la configuración  $5s^25p5d$  fue clasificado por Larsson *et al.* [60]. En éste último trabajo se clasifican 3 transiciones que emiten como láser.

Se estudió el espectro en la región de 500-6700 Å con las fuentes y técnicas

#### 4.1. Determinación de parámetros espectroscópicos

Config.	Parámetro	Valor HFR [cm <sup>-1</sup> ]	Valor fit [cm <sup>-1</sup> ]	Fit/HFR
5s <sup>2</sup> 5p <sup>2</sup>	E <sub>av</sub>		21403	
	F <sup>2</sup> (5p,5p)	55554	50278± 1007	0.905 ± 0.018
	α(5p,5p)		-143 (Fix)	
	ζ <sub>5p</sub>	9095	9593± 202	1.055 ± 0.022
5s <sup>2</sup> 5p6p	E <sub>av</sub>	225119	242484± 113	1.077 ± 0.001
	ζ <sub>5p</sub>	9793	8739± 167	0.892 ± 0.017
	ζ <sub>6p</sub>	2586	2594± 213	1.003 ± 0.082
	F <sup>2</sup> (5p,6p)	19780	17839± 902	0.902 ± 0.046
	G <sup>0</sup> (5p,6p)	4267	3503± 149	0.821 ± 0.035
	G <sup>2</sup> (5p,6p)	5648	5846± 809	1.035 ± 0.143
5s <sup>2</sup> 5p4f	E <sub>av</sub>	187936	200751± 96	1.068 ± 0.001
	ζ <sub>5p</sub>	8858	9330± 191	1.053 ± 0.021
	ζ <sub>4f</sub>	168	168 (Fix)	1.000
	F <sup>2</sup> (5p,4f)	48022	39199± 1173	0.816 ± 0.024
	G <sup>2</sup> (5p,4f)	37402	29201± 825	0.781 ± 0.022
	G <sup>4</sup> (5p,4f)	26627	18663± 1123	0.700 ± 0.042
5p <sup>4</sup>	E <sub>av</sub>	249988	249988 (Fix)	1.000
	F <sup>2</sup> (5p,5p)	55559	55559 (Fix)	1.000
	α(5p,5p)		0 (Fix)	
	ζ <sub>5p</sub>	8994	8994(Fix)	1.000
Integrales de interacción entre configuraciones				
5s <sup>2</sup> 5p <sup>2</sup> - 5s <sup>2</sup> 5p6p	R <sup>0</sup> (5p5p, 5p6p)	1.851	1.851 (Fix)	1.000
5s <sup>2</sup> 5p <sup>2</sup> - 5s <sup>2</sup> 5p6p	R <sup>2</sup> (5p5p, 5p6p)	8.658	8.658 (Fix)	1.000
5s <sup>2</sup> 5p <sup>2</sup> - 5s <sup>2</sup> 5p4f	R <sup>2</sup> (5p5p, 5p4f)	-43.668	-43.668 (Fix)	1.000
5s <sup>2</sup> 5p <sup>2</sup> - 5p <sup>4</sup>	R <sup>1</sup> (5s5s, 5p5p)	72.662	55.680 (Fix)	0.766
5s <sup>2</sup> 5p6p-5s <sup>2</sup> 5p4f	R <sup>2</sup> (5p6p, 5p4f)	-5.314	-5.314 (Fix)	1.000
5s <sup>2</sup> 5p6p-5s <sup>2</sup> 5p4f	R <sup>2</sup> (5p6p, 4f5p)	-6.025	-6.025 (Fix)	1.000

Tabla 4.1: Parámetros de energía de las configuraciones 5s<sup>2</sup>5p<sup>2</sup>, 5s<sup>2</sup>5p6p, 5s<sup>2</sup>5p4f y 5p<sup>4</sup> pertenecientes al Xe V

4.1. Determinación de parámetros espectroscópicos

Designación	$E_{obs}$ [cm <sup>-1</sup> ]	$E_{calc}$ [cm <sup>-1</sup> ]	Porcentaje de composición
5s <sup>2</sup> 5p4f <sup>3</sup> G <sub>3</sub>	186746.7	186752.3	57+38( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> F.
<sup>3</sup> F <sub>4</sub>	190644.7	190712.6	53+39( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> F + 8( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> G
<sup>3</sup> F <sub>2</sub>	191603.5	191268.2	81+11( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D + 7( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> D
<sup>3</sup> F <sub>3</sub>	189663.8	189876.0	47+22( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D + 22( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> F + 9( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> G
<sup>3</sup> D <sub>1</sub>	209310.7	209139.1	100
<sup>3</sup> D <sub>2</sub>	207366.7	207204.4	80+16( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> F
<sup>3</sup> D <sub>3</sub>	205758.8	205913.2	74+18( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> F + 7( <sup>2</sup> P) <sup>5</sup> F
<sup>1</sup> G <sub>4</sub>	214317.7	214683.1	92
<sup>1</sup> F <sub>3</sub>	200010.2	199883.4	33+33( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> G + 32( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> F
<sup>1</sup> D <sub>2</sub>	216745.6	216483.3	86+9( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D
5s <sup>2</sup> 5p5d <sup>3</sup> F <sub>2</sub>	156506.8	156462.7	89+8 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> D) <sup>1</sup> D
<sup>3</sup> F <sub>3</sub>	160630.4	160663.5	93
<sup>3</sup> D <sub>1</sub>	173071.7	173220.1	57+9( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> P + 19 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> P + 11 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>4</sup> S) <sup>3</sup> S
<sup>3</sup> D <sub>2</sub>	181004.3	181050.6	41+ 31( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> D + 19 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> D) <sup>1</sup> D
<sup>3</sup> D <sub>3</sub>	182167.2	181959.0	80 + 6( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> F+ 6( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> F + 8 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> D) <sup>3</sup> D
<sup>3</sup> P <sub>0</sub>	183025.2	183059.3	92 + 8 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> P
<sup>3</sup> P <sub>1</sub>	184147.6	184139.3	68 +18( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D + 7 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> P
<sup>3</sup> P <sub>2</sub>	170987.6	171018.9	48+25( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D + 10( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> D + 12 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> D) <sup>1</sup> D
<sup>1</sup> F <sub>3</sub>	194138.0	194190.1	90+8( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D
<sup>1</sup> D <sub>2</sub>	185795.0	185803.9	15+43( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> P + 22 ( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D + 10 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> D) <sup>1</sup> D + 7 5s5p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> P
<sup>1</sup> P <sub>1</sub>	199959.0	200018.4	55+13 p <sup>3</sup> ( <sup>2</sup> P) <sup>1</sup> P + 24 5s <sup>2</sup> 5p6s( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> P
5s5p <sup>3</sup> <sup>1</sup> P <sub>1</sub>	169672.6	169435.1	28+23 5s <sup>2</sup> 5p5d( <sup>2</sup> P) <sup>5</sup> P + 13 5s <sup>2</sup> 5p5d( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> P + 9 5s <sup>2</sup> 5p5d( <sup>2</sup> P) <sup>3</sup> D + 5 5s <sup>2</sup> 5p5d( <sup>2</sup> D) <sup>3</sup> D

Tabla 4.2: Niveles de energía y porcentaje de composición correspondientes a las niveles que dan lugar a la emisión láser del Xe V

#### 4.1. Determinación de parámetros espectroscópicos

experimentales descritas en el Capítulo 3. Se observaron un total de 233 líneas de las cuales 97 corresponden a nuevas líneas clasificadas, incluyendo 13 transiciones que emiten como láser (Ref. [61]). Se cambiaron los niveles reportados en Ref. [60]  $5s^25p4f\ ^3D_1$  y  $^3G_5$  a  $209310.7\text{ cm}^{-1}$  y  $212281.8\text{ cm}^{-1}$  respectivamente; el primero de ellos corresponde al nivel superior de la línea láser:  $3973.01\text{ Å}$ . Se clasificaron 2 nuevos niveles de energía perteneciente a la configuración  $5s^25p4f$ :  $^3D_2$  y  $^1D_2$  que dan lugar a las transiciones estimuladas:  $4305.69\text{ Å}$  y  $5955.67\text{ Å}$ . Se modificaron también de la Ref. [60], el valor del nivel  $5s^25p5d$  a  $169799.4\text{ cm}^{-1}$  y de  $5s^25p6p\ ^1S_0$  a  $259642.3\text{ cm}^{-1}$ , se reclasificó la transición láser  $3305.96\text{ Å}$  como:  $5s^25p4f\ ^3G_3 \rightarrow 5s^25p5d\ ^3F_2$ .

Se realizaron cálculos Hartree Fock relativistas (RHF) para realizar las predicciones teóricas de los niveles de energía. Se efectuó un ajuste least-squares de los parámetros de energía a los niveles experimentales (Tabla 4.1). Todas las integrales de interacción entre configuraciones se fijaron a su valor Hartree-Fock menos la  $5s^25p^2 - 5p^4$ , que se fijó al 85 % de su valor. La inclusión del parámetro  $\alpha$  redujo la desviación standard. Este se tomó de Ref. [62] para la configuración  $5s^25p^2$  y se dejó fijo para la  $5p^4$ . La desviación standard obtenida para los niveles fue de  $328\text{ cm}^{-1}$ .

En todos los casos el nivel superior de las transiciones que emiten como láser, pertenecen a la configuración  $5s^25p4f$ , y el inferior a la  $5s^25p5d$  y  $5s5p^3$ . En la Tabla 4.2 se presentan los niveles de energía y el porcentaje de composición de correspondientes a las 13 líneas clasificadas.

##### 4.1.2 Parámetros de las transiciones radiativas

A fin de determinar los procesos que dan lugar a la inversión de población, se utilizaron los programas de Cowan a fin de estimar los tiempos de vida, y probabilidades de transición involucrados en cada una de las transiciones láser.

Dependiendo de la relación entre la interacción spin-órbita con la electrostática se tienen distintos tipos de acoplamiento. Si la primera es la dominante debemos usar el acoplamiento JJ, en el caso intermedio son del mismo orden de magnitud y si el electrostático es el dominante tenemos el acoplamiento LS puro. Para nuestro caso, las matrices de energía se construyeron en el esquema LS usando coefi-

#### 4.1. Determinación de parámetros espectroscópicos

cientes de acoplamiento intermedio tabulados por Cowan [31]. Se realizaron cálculos ab-initio Hartree-Fock relativistas (RHF) y de diagonalización de la matriz de energía. A fin de mejorar los valores obtenidos, se hicieron cálculos semiempíricos usando parámetros de energía ajustados por medio de cálculos least-squares. Asimismo, se incluyeron series de Rydberg en los cálculos a fin de mejorar el ajuste de los valores teóricos a los experimentales.

Los cálculos se realizaron para cada uno de los iones involucrados desde el xenón dos veces ionizado (Xe III) hasta el Xe IX inclusive. En todos los casos se incluyeron las configuraciones a los que pertenecen cada uno de los niveles que dan lugar a la emisión láser.

Si bien es cierto que existen transiciones láser de la mayoría de los iones observados, presentaremos a continuación los resultados obtenidos para las transiciones más intensas y en consecuencia las de mayor interés práctico.

##### 1. Xe III

La única línea analizada en el presente trabajo es la 4060.45 Å. Se realizaron cálculos RHF usando los parámetros de energía ajustados por Persson *et al.* [63] incluyéndose las siguientes configuraciones:  $5s^25p^4$ ,  $5s^25p^3(^4S)6p - (^2D)6p - (^2P)6p - (^4S)4f - (^2D)4f - (^2P)4f - (^4S)5f$ ,  $5p^6$ , de la paridad par y  $5s5p^5$ ,  $5s^25p^3(^4S)6s - 7s$ ,  $5s^25p^3(^2D)6s - 7s$ ,  $5s^25p^3(^2P)6s - 7s$ ,  $5s^25p^3(^4S)5d - 6d$ ,  $5s^25p^3(^2D)5d - 6d$ ,  $5s^25p^3(^2P)5d - 6d$ , de la impar.

##### 2. Xe V

A partir de los resultados obtenidos en éste trabajo fue posible se realizar cálculos similares a los mencionados previamente para el Xe III. En éste caso se incluyeron las configuraciones:  $5s^25p^2$ ,  $5s^25p6p$ ,  $5s^25p4f$  y  $5p^4$ , de paridad par y las  $5s5p^3$ ,  $5s^25p5d$ ,  $5s^25p6s$ ,  $5s^25p6d$  y  $5s^25p7s$ , de paridad impar; se usaron los parámetros de energía obtenidos de la Tabla 4.1 y de Ref. [62].

##### 3. Xe VII

Las dos transiciones láser clasificadas que pertenecen al Xe VII [64], comparten el mismo nivel superior. Dado que hasta el momento la mayoría de los niveles



#### 4.1. Determinación de parámetros espectroscópicos

pertenecientes a la configuración  $5s4f$  (a la que pertenece el nivel superior de las transiciones analizadas) son desconocidos, no es posible realizar un cálculo confiable haciendo ajustes del tipo least-square. En éste caso, se realizaron cálculos ab-initio incluyendo las configuraciones:  $5s5p$ ,  $5s4f$ ,  $5s6p$  y  $5p5d$ , de paridad impar y  $5s^2$ ,  $5p^2$ ,  $5s5d$  y  $5s6s$ , de paridad par.

#### 4. Xe VIII

En éste caso el ion posee solamente un electrón fuera de capa cerrada, por lo que las interacciones debidas a la inclusión de las series de Rydberg en el cálculo, se vuelven relevantes [31]. Las interacciones entre las series son fuertes e impredecibles y su inclusión modifica los tiempos de vida de los niveles involucrados en el cálculo. Dado que los niveles pertenecientes a las configuraciones más altas de éste ion permanecen sin clasificarse aun, se debieron realizar cálculos del tipo ab-initio. Los cálculos incluyeron todas las series de Rydberg  $ns$  y  $np$  hasta  $n=15$  y  $nd$  y  $nf$  hasta  $n=12$ . Al incluir éstas series se tuvo en cuenta el hecho que en general el tiempo de vida de los niveles superiores correspondientes a láseres gaseosos es mucho más grande que el inferior.

Los resultados mostraron probabilidades de transición espontánea calculadas del orden de  $10^7 s^{-1}$  y que el tiempo de vida del nivel superior es por lo menos un orden de magnitud mayor que el correspondiente al nivel inferior, resultados en acuerdo con los obtenidos para otros tipos de láseres iónicos de gases nobles [44]. En la Tabla 4.3 se muestran los parámetros obtenidos para las transiciones analizadas, con su correspondiente clasificación y especie iónica.

Las dos transiciones pertenecientes al Xe VII poseen el mismo nivel superior, por lo que presentan una anticorrelación en su intensidad como fue reportado previamente por Marling *et al.* [11]. La transición  $2315.43 \text{ \AA}$  posee una probabilidad de transición calculada un orden de magnitud mayor que la  $3645.48 \text{ \AA}$ . Esto es de esperarse puesto que ésta última es una transición de las denominadas "prohibidas" por ser de  $F \rightarrow P$  ( $\Delta L = 2$ ) violándose una de las reglas de selección para transiciones con interacción LS. Dado que para nuestro caso, el acoplamiento es del tipo intermedio, no hay contradicción alguna. Nuestras observaciones de la emisión espontánea (ver

#### 4.1. Determinación de parámetros espectroscópicos

$\lambda$ [Å] (aire)	Ion	Clasificación $E_3 \rightarrow E_2$	$\tau_3$ [ns]	$\tau_2$ [ns]	$A_{32}$ [ $10^7 \text{s}^{-1}$ ]
2315.43	VII	$5s4f ({}^2S) {}^1F_3 \rightarrow 5p^2 ({}^1D) {}^1D_2$	20.4	0.38	6.0
3246.99	VIII	$6d ({}^1S) {}^2D_{5/2} \rightarrow 5f ({}^1S) {}^2F_{7/2}$	3.3	0.37	0.2
3305.96	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3G_3 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3F_2$	9.9	0.78	3.0
3330.84	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3F_4 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3F_3$	12.0	0.71	4.8
3350.03	VIII	$6d ({}^1S) {}^2D_{3/2} \rightarrow 5f ({}^1S) {}^2F_{5/2}$	3.1	0.50	0.1
3645.48	VII	$5s4f ({}^1S) {}^1F_3 \rightarrow 5p^2 ({}^3P) {}^3P_2$	20.4	0.12	0.5
3803.26	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3D_1 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3P_0$	8.3	0.04	1.7
3973.01	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3D_1 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3P_1$	8.3	0.04	1.4
4060.45	III	$5s^2 5p^3 ({}^2p) 6p {}^1D_2 \rightarrow 5s^2 5p^3 ({}^2p) 6s {}^1P_1$	3.1	0.10	10.0
4305.69	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3D_2 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3P_1$	8.6	0.04	1.2
4558.49	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3F_2 \rightarrow 5s^2 5p^3 ({}^2P) {}^1P_1$	8.8	0.05	0.5
4954.13	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^1G_4 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^1F_3$	38.3	0.04	1.8
5007.80	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3D_3 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^1D_2$	9.2	0.05	1.0
5159.08	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3F_4 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3D_3$	10.4	0.04	1.0
5260.19	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^1F_3 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3D_2$	9.5	0.05	0.8
5352.92	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3F_3 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3P_2$	9.7	0.04	0.9
5394.62	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^3F_2 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^3D_1$	8.8	0.06	0.6
5955.67	V	$5s^2 5p4f ({}^2P) {}^1D_2 \rightarrow 5s^2 5p5d ({}^2P) {}^1P_1$	8.2	0.07	0.5

Tabla 4.3: Probabilidad de transición  $A_{32}$ , tiempos de vida del nivel superior  $\tau_3$  e inferior  $\tau_2$  calculados, para transiciones láser.

#### 4.1. Determinación de parámetros espectroscópicos

Tabla 3.1), muestran intensidades similares para ambas transiciones. Sin embargo si tenemos en cuenta que la línea 2315.43 Å se encuentra en una zona donde el aire y nuestros instrumentos de medida ya comienzan a absorber la radiación y, teniendo en cuenta que las intensidades presentadas en la Tabla 3.1 son de índole visual (con una dependencia logarítmica con la intensidad), la aparente contradicción desaparece.

##### 4.1.3 Ancho de línea

Para estimar el ancho de línea de las transiciones que dan lugar a la emisión láser, se debió calcular el ensanchamiento por los principales procesos para éste tipo de plasma: por efecto Doppler y por presión. No se tuvo en cuenta otras causas posibles como: tiempo de vuelo y saturación, por considerarse despreciables bajo nuestras condiciones experimentales [37].

Teniendo en cuenta que la temperatura iónica, es mucho menor que la electrónica [65] para nuestras condiciones y que ésta última es del orden de  $10^5$  K [13], haciendo uso de la expresión (2.18) se puede estimar el ensanchamiento de la línea por efecto Doppler.

Para evaluar el ensanchamiento por presión se hizo uso de la fórmula propuesta por Griem (2.22). Para ésto, se debieron calcular los elementos de matriz  $\langle i | r^2 | i \rangle$ . Se incluyeron en el suma el efecto de aquellos niveles que mostraron mayor interacción (probabilidad de transición) con el nivel considerado. En general sólo se incluyeron entre 3 y 4 términos por transición.

Nuestros cálculos mostraron que el ensanchamiento calculado es del orden de 0.1 Å.

Por otro lado, se realizaron estimaciones del ancho de las líneas a partir de la información experimental. Se obtuvieron registros digitales de los espectros fotografiados, haciendo uso del comparador Grant (microdensitómetro) consiguiéndose un registro de la intensidad las líneas en función de la posición (Figura 3.7). La determinación se obtiene ajustando el perfil de línea por medio de una función lorentziana, donde el ancho de la curva depende de la dispersión de la placa en la zona espectral. Sin embargo en muchos de los casos el solapamiento de las líneas y su intensidad (que

en algunos casos satura a la placa), impidió realizar una buena medida. Aun así, los resultados teóricos fueron corroborados con éstas medidas, con anchos medidos del orden de 0.2 - 0.4 Å para transiciones intensas.

## 4.2 Dinámica del plasma

Se propone un modelo para la evolución de las densidades de población en función del tiempo en base a las características de nuestro plasma; luego las predicciones son comparadas con los resultados experimentales obtenidos.

### 4.2.1 Modelo resuelto en tiempo

#### Introducción

Bajo nuestras condiciones experimentales no puede darse el equilibrio termodinámico total dada la naturaleza transiente del fenómeno y puesto que la energía en la periferia del tubo nunca puede igualar a la del centro. Además hay radiación que escapa del plasma por lo que las partículas y la radiación no pueden tener la misma temperatura. Sin embargo muchas veces se satisface el criterio para tener equilibrio termodinámico local (LTE).

Deberemos analizar para nuestro caso particular si es que se satisface la relación (2.49), para tener LTE. Papayoanou *et al.* realizaron medidas interferométricas [12] de la densidad electrónica, y estimaron la temperatura [13], bajo condiciones experimentales similares a las nuestras. La densidad electrónica toma valores típicos de  $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , la temperatura del plasma es la de los electrones que es del orden de  $10^5 \text{ K}$  y el salto de energía típico para las transiciones que dan lugar a la emisión estimulada es de 3.5 eV.

Estos resultados pueden utilizarse en nuestro plasma como veremos a continuación. La evidencia experimental muestra la existencia de xenón ocho veces ionizado (Xe IX) y no se observan transiciones del átomo neutro (Xe I). Es así que es posible estimar admitiendo que todas las especies están igualmente pobladas que el grado de ionización medio es aproximadamente cinco. Para las condiciones típicas de

descarga a las que el sistema muestra emisión estimulada, la densidad de partículas es  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$  y en consecuencia la densidad pico de electrones será  $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , en perfecto acuerdo con las medidas de Ref. [12]. Por otro lado el análisis temporal mostró que aun las transiciones pertenecientes al Xe II poseen un retraso al emitir respecto a la corriente de aproximadamente 50 ns, como se muestra en la Figura 3.13. Teniendo en cuenta que la energía de ionización del xenón neutro es de 12.1 eV [31], y que el tiempo de vida típico para el nivel superior de las transiciones radiativas estudiadas es del orden de 10 ns o menor, es esperable tener una temperatura electrónica inferior a 10 eV. En efecto, si  $T_e$  fuese mayor podríamos llegar hasta los excitados del Xe II en un proceso de excitación directa y en consecuencia se registraría emisión desde el comienzo de la corriente.

De esta manera, reemplazando los valores anteriores en la expresión (2.49) obtenemos:

$$1.6 * 10^{12} T^{1/2} \Delta E = 2 * 10^{15} \text{ cm}^{-3} \sim n_e = 5 * 10^{15} \text{ cm}^{-3} \quad (4.1)$$

por lo que en principio no nos es posible asegurar la existencia de equilibrio termodinámico local, en especial para presiones bajas (como por ejemplo 5 mTorr). En éste caso, la solución al problema no es sencilla y deberá tener en cuenta los principales procesos involucrados en la excitación y desexcitación del plasma como se mencionó previamente.

Sin embargo, aun es posible considerar que la distribución de energía de los electrones es maxwelliana. En efecto, si  $t_{ee}$  y  $t_{ii}$  son los tiempos de colisión entre electrones y entre iones respectivamente, el tiempo de autocolisión vale [66]:

$$t_{ee} = 0.266 \frac{T_e^{3/2}}{n_e} \quad (4.2)$$

donde  $T_e$  se mide en  $K$  y  $n_e$  en  $\text{cm}^{-3}$ , y para los valores mencionados previamente está en el orden del nanosegundo. También es posible mostrar [13], que el tiempo necesario para que los electrones e iones alcancen la misma temperatura es  $4 \times 10^4 t_{ee}$ , es decir del orden de decenas de microsegundos; tiempo mucho mayor respecto a nuestro pulso de corriente.

$t[ns]$	$\langle n_e(r) \rangle [10^{15} cm^{-3}]$	$n_e (r = 0) [10^{15} cm^{-3}]$
100	0.2	0.2
200	1.5	1.8
300	2.8	3.0
400	5.0	8.0
500	5.8	10.0
600	5.8	10.0
700	4.9	8.0
800	2.9	4.0

Tabla 4.4: Variación de la densidad electrónica promediada transversalmente y en el centro del tubo.

### Contracción del plasma

A fin de analizar el efecto del pinch en nuestra descarga usaremos la información obtenida por Papayoanou *et al.* (Ref. [12] y [13]), usando una "streak camera" para fotografiar al plasma y así obtener su radio efectivo, y métodos interferométricos para determinar la dependencia de la densidad electrónica con el radio.

A partir de las medidas de dicho trabajo, se calculó la densidad electrónica promedio en el tubo para cada tiempo, a fin de compararla con lo observado en el centro del mismo. En la Tabla 4.4, y en la Figura 4.1 se muestran los resultados de la variación de la densidad electrónica con el tiempo y con el radio respecto de la promediada en todo el tubo.

De los resultados se observa que la densidad electrónica varía en un factor menor a 2 bajo las condiciones experimentales usadas.

A partir de las medidas de Papayoanou, se desprende que la densidad electrónica promediada para los distintos radios (densidad promedio) está retrasada aproximadamente 200 ns respecto a la corriente, sin embargo tiene la misma forma senoidal como se observa en la Figura 4.2. Se incluyó en el mismo gráfico la densidad efectiva, es decir la densidad promediada pero sólo en donde se obtuvo emisión radiativa y no en todo el tubo como en el caso anterior. Los resultados muestran que el incremento de densidad electrónica debido al pinch no hace crecer tanto a  $n_e$  como

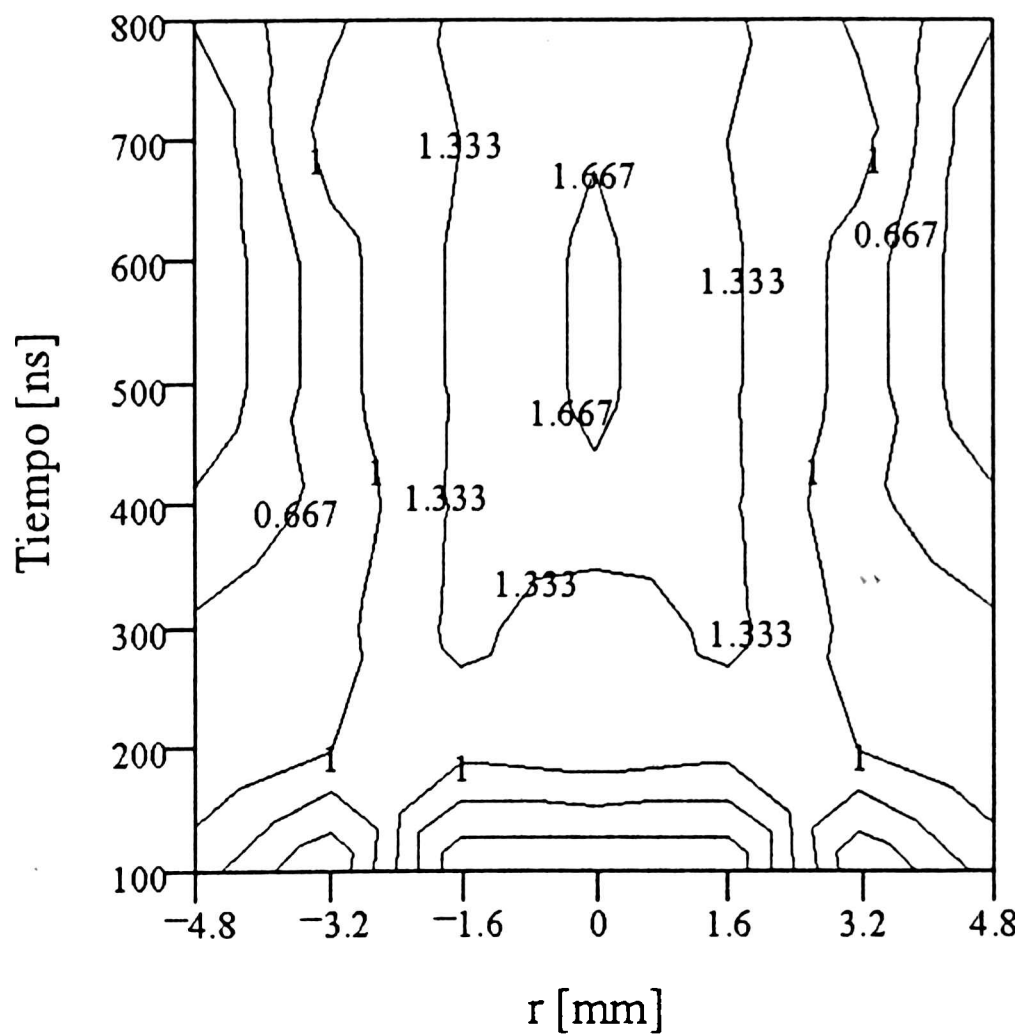


Figura 4.1: Cociente entre la densidad electrónica como función de la coordenada radial  $r$ , y la densidad promediada en el tubo, en función del tiempo.

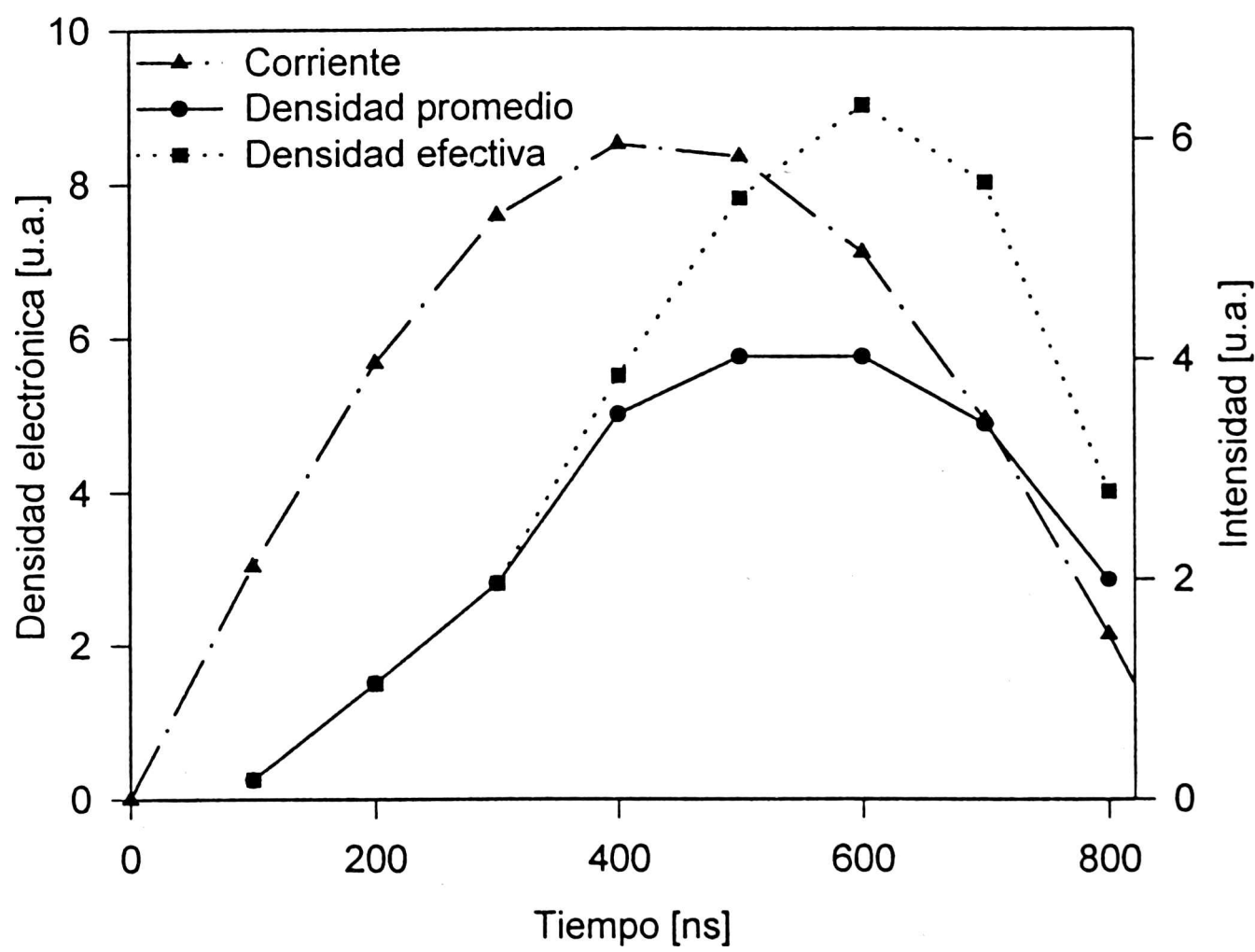


Figura 4.2: Evolución temporal de la corriente y la densidad electrónica.

lo haría un aumento en la tensión de descarga o una disminución en la presión.

### Ecuaciones de balance para las poblaciones

Como vimos, dependiendo de la transición y otros parámetros experimentales como la presión y la tensión de descarga, no podemos asegurar en general la existencia de equilibrio termodinámico local (LTE). Por otro lado, la distribución Boltzmann sobre los distintos niveles de energía (2.31) no es válida, como así tampoco la distribución de Saha para los distintos iones (2.32). Sin embargo, ya vimos que los electrones conservan su distribución de energía maxwelliana (2.30) y que valen las relaciones de equilibrio usando el principio de balance detallado para la excitación con la desexcitación (2.42) y para la ionización con la recombinación de tres cuerpos (2.43). Debemos ahora analizar los principales procesos que tienen lugar en nuestro plasma para tenerlos en cuenta al hacer el modelo teórico. De los resultados previos, se deberá incluir tanto los procesos radiativos como los colisionales. Si bien no es posible resolver de manera exacta el problema (porque implicaría resolver miles de ecuaciones acopladas simultáneamente y el conocimiento de infinidad de parámetros experimentales), es posible hacer una buena aproximación teniendo en cuenta un número reducido de niveles pero incluyendo los principales procesos de excitación y desexcitación involucrados.

Se restringirá el análisis a las transiciones ópticamente permitidas, puesto que éstas tienen un valor apreciable en un rango energético mucho más grande que las prohibidas, como se analizó previamente. No se incluirán en el presente modelo variación en la densidad electrónica con el radio del tubo, haciendo la suposición que los principales procesos ocurren cerca de la región axial.

La evolución temporal de las densidades de población, deberá satisfacer las ecuaciones de balance determinada por cada uno de los procesos involucrados. En todos los casos, los términos son directamente dependientes de la densidad de población correspondiente. Todos los procesos de excitación, desexcitación, ionización y recombinación dielectrónica son proporcionales además a la densidad de electrones  $n_e$ , mientras que la recombinación de tres cuerpos es proporcional al cuadrado de  $n_e$ .



Siguiendo la notación espectroscópica, si  $z$  es la carga del átomo sin el electrón óptico, la evolución temporal de la densidad de población  $N_j^z$ , del  $j$ -ésimo nivel excitado del ion  $z$ , estará gobernada por el siguiente conjunto de ecuaciones de balance:

$$\begin{aligned} \frac{dN_j^z}{dt} = & n_e(t) \sum_{i < j} \langle v\sigma_{ij} \rangle^z N_i^z - n_e(t) \sum_{k > j} \langle v\sigma_{jk} \rangle^z N_j^z - \sum_{i < j} (A_{ji}^z + n_e(t) \langle v\sigma_{ji} \rangle^z) N_j^z \\ & + \sum_{k > j} (A_{kj}^z + n_e(t) \langle v\sigma_{kj} \rangle^z) N_k^z - n_e(t) \sum_i S_{ji}^z N_j^z + n_e(t) \sum_k S_{kj}^{z-1} N_k^{z-1} \\ & + n_e(t) (\kappa_{rdielec1j}^z + \kappa_{rrad1j}^z) N_1^{z+1} + n_e^2(t) (\kappa_{r3cpo1j}^z) N_1^{z+1} \\ & - n_e(t) \delta_{j1} \sum_i (\kappa_{rdielecji}^{z-1} + \kappa_{rdadji}^{z-1}) N_j^z - n_e^2(t) \delta_{j1} \sum_i (\kappa_{r3cpo1j}^{z-1}) N_j^z - r_j N_j^z \quad (4.3) \end{aligned}$$

Los 2 primeros términos corresponden a los procesos de excitación y desexcitación hacia y desde niveles de energía más altos. Las sumas que representan el tercer y el cuarto término, son los canales de desexcitación de forma radiativa y colisional. Los siguientes 2 términos están asociados a los procesos de ionización, los siguientes 4 términos corresponden a los procesos de recombinación y el último término corresponde a la recombinación por colisiones contra las paredes del tubo por difusión.

$\langle v\sigma_{ij} \rangle^z$  es el coeficiente de la tasa de excitación desde un nivel  $i$  hacia el  $j$  correspondiente al ion  $z$  (es decir, al Xe  $z-1$  veces ionizado). Para calcularlo se hizo uso de la expresión semiempírica propuesta por Regemorter (2.57), que repetimos aquí por comodidad:

$$\langle v\sigma_{ij} \rangle = 10^{-8} \times 32 \times f_{ij} \left( \frac{R_y}{\Delta E} \right)^{3/2} \beta^{1/2} \exp(-\beta) p(\beta)$$

Las intensidades de oscilador  $f_{ij}$  fueron determinadas por medio de cálculos Hartree-Fock relativistas haciendo uso del código desarrollado por Cowan [31]. Estas son del orden de  $10^{-2}$  entre  $N_3$  y  $N_2$  para mayoría de las transiciones que dan lugar a la emisión láser. Otros valores típicos para  $f_{ij}$ , en transiciones intensas puede ser uno y hasta dos órdenes de magnitud mayor. Resolviendo dichas ecuaciones para valores

típicos de temperatura electrónica ( $8 \text{ eV} \simeq 9.3 \times 10^4 \text{ K}$  cuando la corriente alcanza su máximo), obtenemos para  $\langle v\sigma_{ij} \rangle^z$  valores del orden de  $10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$  dependiendo de la intensidad de oscilador.

El coeficiente de desexcitación  $\langle v\sigma_{ji} \rangle^z$  puede ser calculado por medio de (2.42) que es independiente de las condiciones de equilibrio del plasma. El orden de magnitud éste coeficiente es el mismo que el de excitación, cuando el salto energético no es muy grande. Sin embargo, la expresión contiene el término  $\exp(\beta)$ , lo que hace que en equilibrio éste coeficiente sea mayor al de excitación. Pero dado que estamos analizando al sistema en una situación lejos del equilibrio, durante la crecida de la corriente la tasa correspondiente al primero de los procesos es mayor que la del segundo.

La probabilidad de decaimiento radiativo  $A_{ji}^z$  se calculó por medio del programa de Cowan [31], mencionado previamente. Valores típicos para éste coeficiente es del orden de  $10^7 \text{ s}^{-1}$  para el caso de las transiciones que dan lugar a la emisión láser, como se mostró en la Tabla 4.3. Estos valores están en acuerdo con los valores experimentales para otros láseres gaseosos iónicos [44].

$S_{ji}^z$ , es el coeficiente de ionización por impacto electrónico directo desde el nivel  $j$  del ion  $z$ , al nivel  $i$  del ion  $z+1$ . En éste modelo se despreciaron los procesos de ionización múltiple, porque los cálculos indicaron para nuestro rango energético, que su contribución a la población del nivel  $z+2$  es menor al 10 % para los iones bajos y despreciable para los más altos. Para su cálculo, se hizo uso de la expresión semiempírica (2.60), que es válida en general y es del orden de  $10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ , dependiendo de la energía necesaria para ionizar. Las energías de ionización fueron obtenidas de los cálculos Hartree-Fock relativistas con parámetros ajustados y del tipo ab-initio.

A partir de [67] o de las tablas presentadas por Willett [44], es posible estimar que la sección eficaz colisional es del orden de  $10^{-15} \text{ cm}^2$ , y calcular la frecuencia de colisión entre un electrón con los iones y entre iones. Haciendo uso de las expresiones (2.37) y (2.38), para una temperatura electrónica máxima del orden de  $10^5 \text{ K}$ , obtenemos que la frecuencia colisional entre iones es al menos un orden menor que con electrones, por lo que no tendremos en cuenta en el cálculo.

$\kappa_{rdielec_{kj}}^z$ ,  $\kappa_{rrad_{kj}}^z$  son los coeficientes de recombinación dielectrónica y radiativa respectivamente, desde un nivel  $k$  del ion  $z+1$  hacia el nivel  $j$  del ion  $z$ . Dado que en general éstos procesos se dan fundamentalmente desde niveles metaestables (su tiempo de vida es mucho mayor que el de los estados excitados), sólo se tendrá en cuenta la recombinación desde el nivel fundamental y hacia estados energéticamente altos con número cuántico principal alto, según lo propuesto en el libro de Sobelman [42]. El coeficiente de recombinación dielectrónica fue calculado haciendo uso de la expresión semiempírica (2.67) obteniéndose valores del orden de  $10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ . Este coeficiente tiene relevancia para intensidades de oscilador grandes ( $>0.1$ ), valores que son típicos para transiciones fuertes entre estados excitados con el fundamental. El coeficiente de recombinación radiativa, puede ser calculado a partir de (2.66), pero los cálculos indican que es despreciable frente al término de recombinación dielectrónica.

El coeficiente de recombinación de tres cuerpos  $\kappa_{r_{kj}}^z$ , puede calcularse a partir de (2.59). A pesar que ésta tasa de recombinación depende con el cuadrado de  $n_e$  es también despreciable frente a la dielectrónica, como es esperable para las densidades electrónicas involucradas en nuestro experimento [42].

La tasa de recombinación por colisiones contra las paredes adiciona un término que en principio no es despreciable frente a los otros. Para estimar su importancia haremos uso de la ecuación (2.40), donde supondremos en principio que los efectos del pinch son despreciables. Siguiendo a Papayoanou [13], haremos uso del hecho que los iones tienen una energía promedio mucho menor que los electrones. De ésta forma podremos calcular su velocidad de deriva, para luego comparar éste coeficiente de recombinación frente al de recombinación dielectrónica. Suponiendo que el análisis es realizado en las cercanías al centro del tubo, los cálculos muestran que ésta tasa es al menos 10 veces menor que la de recombinación dielectrónica. Sólo se vuelve comparable con ésta al principio de la corriente y al final de la misma, por lo que no tendremos en cuenta en nuestros cálculos posteriores (ver Figura 4.3).

El sistema de ecuaciones deberá satisfacer la condición inicial que  $N_1^1$  (es decir, la densidad de población del nivel fundamental del átomo neutro), toma un valor de aproximadamente  $10^{15} \text{cm}^{-3}$ , dependiendo de la presión de llenado del tubo, y cero para el resto de los niveles.

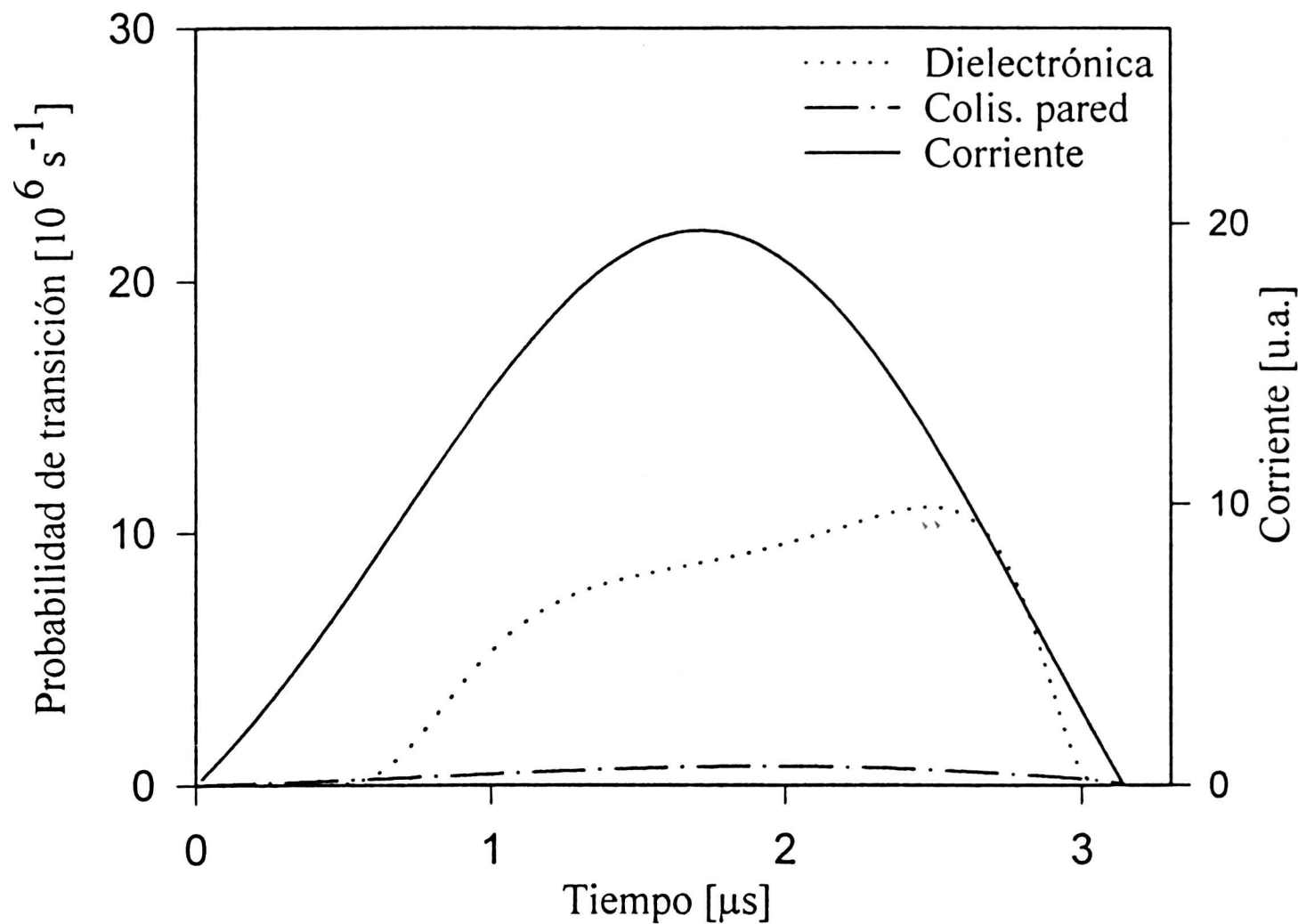


Figura 4.3: Probabilidad de transición calculada por recombinación: dielectrónica y colisional contra las paredes del tubo en función del tiempo.  $T_e = 8 \times 10^4 \text{ K}$ .

La corriente  $i(t)$  es simulada en el modelo por medio de la siguiente función:

$$i(t) = \sin(kt) \exp(-gt) \quad (4.4)$$

siendo  $k$  y  $g$  constantes de ajuste a la corriente experimental. Finalmente, haremos uso de los resultados obtenidos por Hattori *et al.* [4], donde la temperatura electrónica medida sigue al comportamiento temporal del pulso de corriente, por lo que introduciremos para  $T_e$  ésta dependencia temporal.

Teniendo en cuenta que la carga se conserva, la densidad de electrones  $n_e(t)$  puede ser calculada en el sistema de ecuaciones (4.3), por medio de la siguiente relación:

$$n_e(t) = \sum_z \sum_j N_j^z(t) [z - 1] \quad (4.5)$$

Es decir que los electrones producidos por ionización se suman a la corriente total. A fin de no tener una solución nula en el sistema (4.3), se incluyó una corriente inicial ( $T_e = 0.5 \text{ eV}$ ) o semilla al resolver el sistema de ecuaciones.

Para tener en cuenta el efecto de la contracción dinámica del plasma (pinch), se hizo uso de los resultados obtenidos por Papayoanou. Dado que el modelo propuesto no tiene en cuenta los efectos radiales, éstos se incluyeron por medio de una función gaussiana que modifica la densidad calculada debido al flujo de electrones hacia el centro del tubo. Esta se ajustó a los valores experimentales presentados previamente en la Figura 4.2, por lo que  $n'_e$  (la densidad de electrones con pinch) deberá satisfacer:

$$n'_e = n_e \left[ 1 + A \exp \left( - [\{t - t_o\} / \tau]^2 \right) \right] \quad (4.6)$$

donde  $A$ ,  $t_0$  y  $\tau$  son parámetros de ajuste.

Tanto las estimaciones de Papayoanou *et al.* [13], como los resultados teóricos de Sherar [67], bajo condiciones muy similares a las nuestras presentan resultados para la temperatura electrónica menores a 10 eV. Bajo éstas condiciones, los cálculos teóricos iniciales muestran que, dado que la energía de ionización del Xe IX es de 171 eV [31] (mucho mayor que la energía de excitación), la población calculada para el Xe X es despreciable frente a la de los otros iones. Por otra parte los resultados experimentales obtenidos para éste gas, no muestran presencia de Xe X, por lo que restringiremos la resolución del sistema de ecuaciones a  $z \leq 9$ .

### 4.2.2 Análisis del modelo

A fin de analizar los mecanismos involucrados en la descarga pulsada de xenón, se hará uso del modelo propuesto a fin de compararlo con los resultados obtenidos y comprender los principales mecanismos que dan lugar a los comportamientos observados experimentalmente. Como se mencionó, es muy difícil resolver éste sistema de ecuaciones para todos los niveles. Sin embargo, dado que se observó que todas las líneas pertenecientes al mismo ion tienen comportamientos similares, haremos la suposición que los mismos procesos de excitación y desexcitación afectan a cada una de las transiciones. Estos procesos involucran que los niveles son poblados y despoblados por impacto electrónico directo, decaimiento radiativo, y recombinación dielectrónica. Bajo éstas condiciones, haciendo uso de solamente algunos niveles representativos de cada ion, podremos resolver el sistema de ecuaciones (4.3), a fin de

reproducir las principales características temporales observadas.

Dado que el sistema de ecuaciones (4.3) es acoplado, deberá ser resuelto de manera numérica. Se hizo uso de programas comerciales como el "Mathematica" y "MathCad", que hacen uso del método de Runge-Kutta y ajustan la separación temporal de los puntos en donde es evaluado el sistema para hallar su solución. Los efectos del pinch fueron introducidos imponiendo la dependencia (4.6) para  $n_e(t)$ , y éste último se incluyó en el sistema de ecuaciones (4.3).

A fin de simplificar el cálculo se eliminaron los términos que incluyen los efectos de los procesos de recombinación radiativa, de tres cuerpos y por colisión con las paredes, dado que según lo mostrado previamente sus efectos son despreciables frente al proceso de recombinación dielectrónica, para el rango de energía analizado y durante el periodo de breakdown. Entonces el sistema (4.3) se reduce a:

$$\begin{aligned} \frac{dN_j^z}{dt} = & n_e'(t) \sum_{i < j} \langle v \sigma_{ij} \rangle^z N_i^z - n_e'(t) \sum_{k > j} \langle v \sigma_{jk} \rangle^z N_j^z - \sum_{i < j} (A_{ji}^z + n_e'(t) \langle v \sigma_{ji} \rangle^z) N_j^z \\ & + \sum_{k > j} (A_{kj}^z + n_e'(t) \langle v \sigma_{kj} \rangle^z) N_k^z - n_e'(t) \sum_i S_{ji}^z N_j^z + n_e'(t) \sum_k S_{kj}^{z-1} N_k^{z-1} \\ & + n_e'(t) \kappa_{rdielec1j}^z N_1^{z+1} - n_e'(t) \delta_{j1} \sum_i \kappa_{rdielecji}^{z-1} N_j^z \end{aligned} \quad (4.7)$$

donde toda la terminología fue definida previamente.

Para todos los iones se incluyó el nivel fundamental y hasta 4 niveles excitados por ion. La solución del sistema queda determinada en función de la presión del sistema (densidad inicial de partículas) y la temperatura electrónica máxima que se alcanza durante la descarga.

La evolución temporal de la densidad de los electrones fue calculada en cada uno de los casos a partir del uso de la ecuación (4.5). En la Figura 4.4 se muestra la los resultados obtenidos para una temperatura electrónica máxima de  $1.2 \times 10^5$  K. Los resultados están en acuerdo con lo observado experimentalmente por Papayouanou (ver Figura 4.2). La densidad para  $n_e$  calculada presenta en rasgos generales el mismo comportamiento temporal que la corriente en el sistema pero con un pequeño retraso debido al tiempo en comenzar a ionizar el plasma. Al finalizar la corriente resta

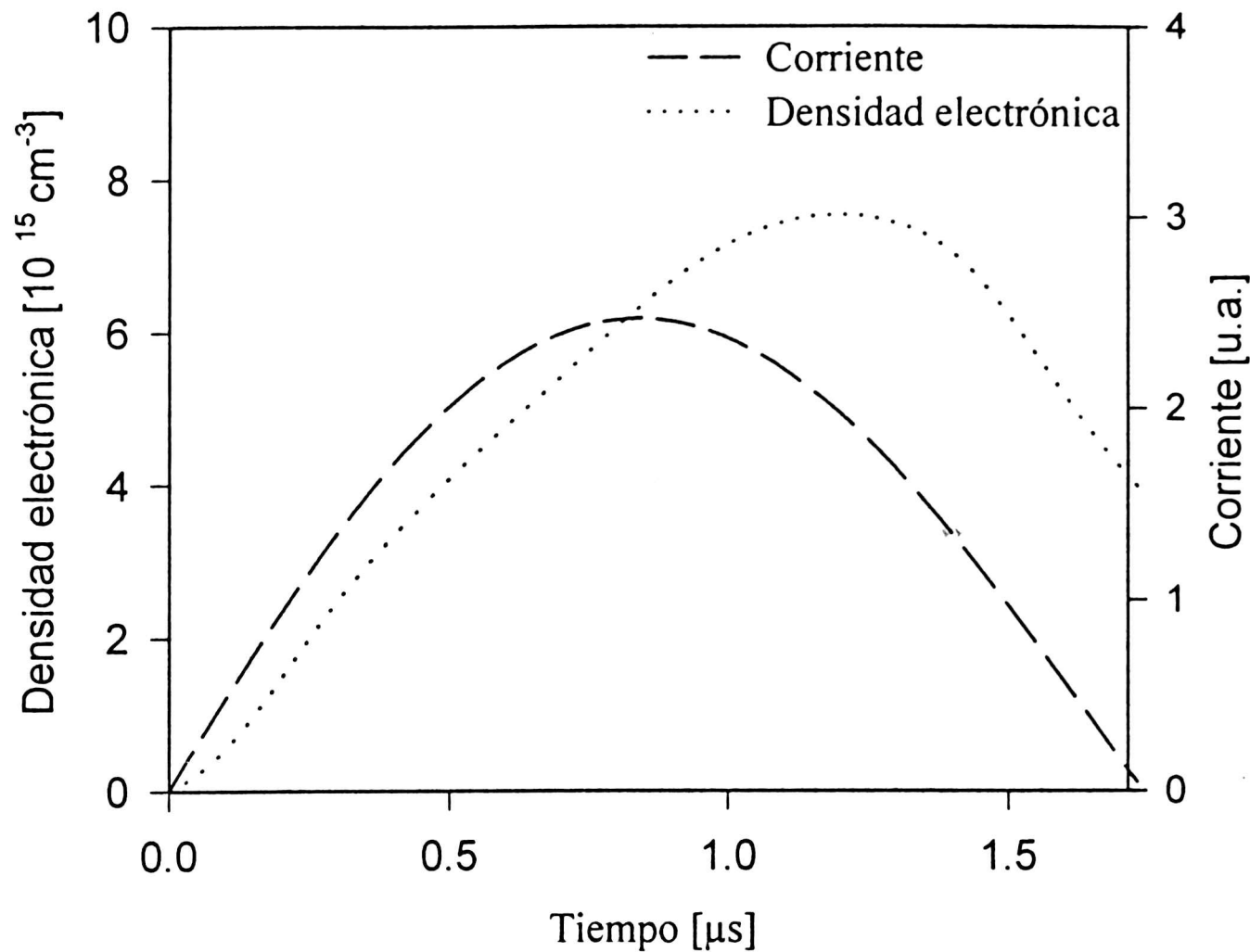


Figura 4.4: Densidad de electrones calculada y corriente de excitación para una  $T_e$  máxima de  $1.2 \times 10^5 \text{ K}$ .

una fracción de electrones que son capturados por los iones por varios procesos. Es esperable que ahora el término de recombinación por colisión con las paredes sea importante. Por otro lado experimentalmente se observó para el Xe II un aumento en la emisión luego de finalizada la corriente debido al decaimiento por cascada y por recombinación.

Se analizó también la evolución temporal de la población de cada uno de los iones en función del tiempo. Para ello se resolvió el sistema de ecuaciones bajo distintas condiciones de descarga variando la temperatura electrónica. Para calcular la densidad de población total de cada ion, se sumó para cada instante de tiempo la densidad de población resultante calculada, sobre todos los niveles perteneciente a cada especie iónica, incluidos en el modelo. En la figura 4.5 se muestran los resultados obtenidos para una  $T_e$  máxima de  $10^5 \text{ K}$  y una corriente de  $2 \mu s$  de duración. Se observa claramente que la población es transferida hacia las especies iónicas más altas durante la crecida de la corriente, alcanzándose el mayor grado iónico cerca del máximo de la corriente. Luego, los procesos de recombinación dominan por sobre



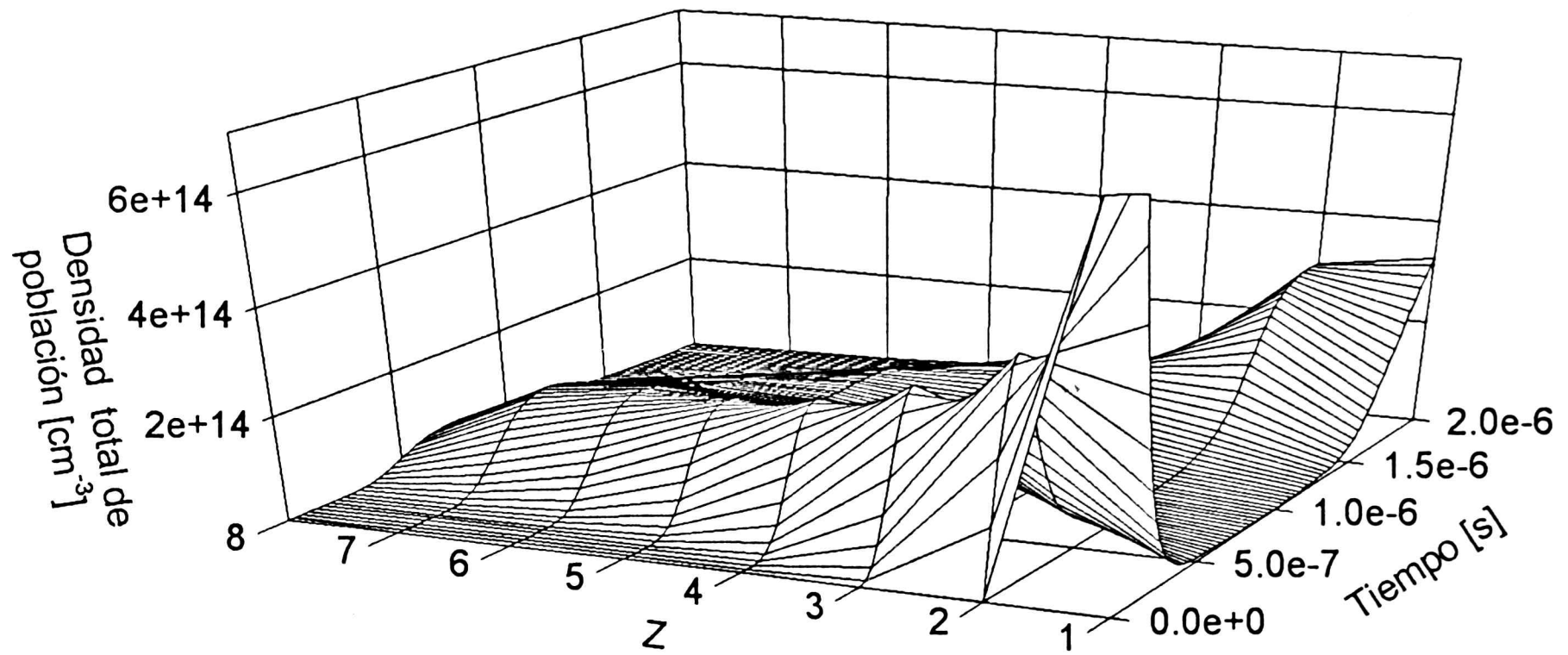


Figura 4.5: Evolución temporal de la densidad total de población por ion para  $T_e = 10^5$  K, presión de 20 mTorr; densidad inicial de átomos neutros:  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$

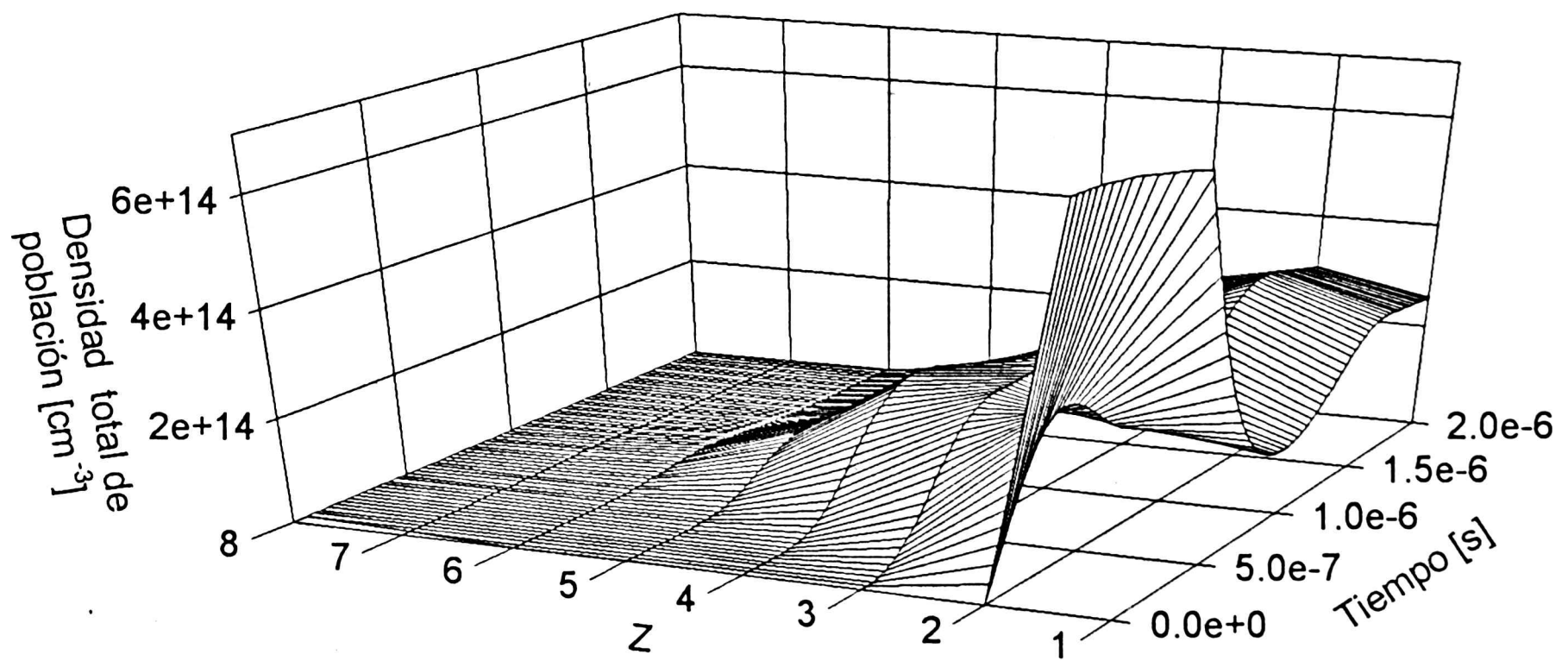


Figura 4.6: Evolución temporal de la población total para cada ion para una  $T_e = 5 \times 10^4$  K,  $p = 20$  mTorr; densidad inicial de átomos neutros:  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$ .



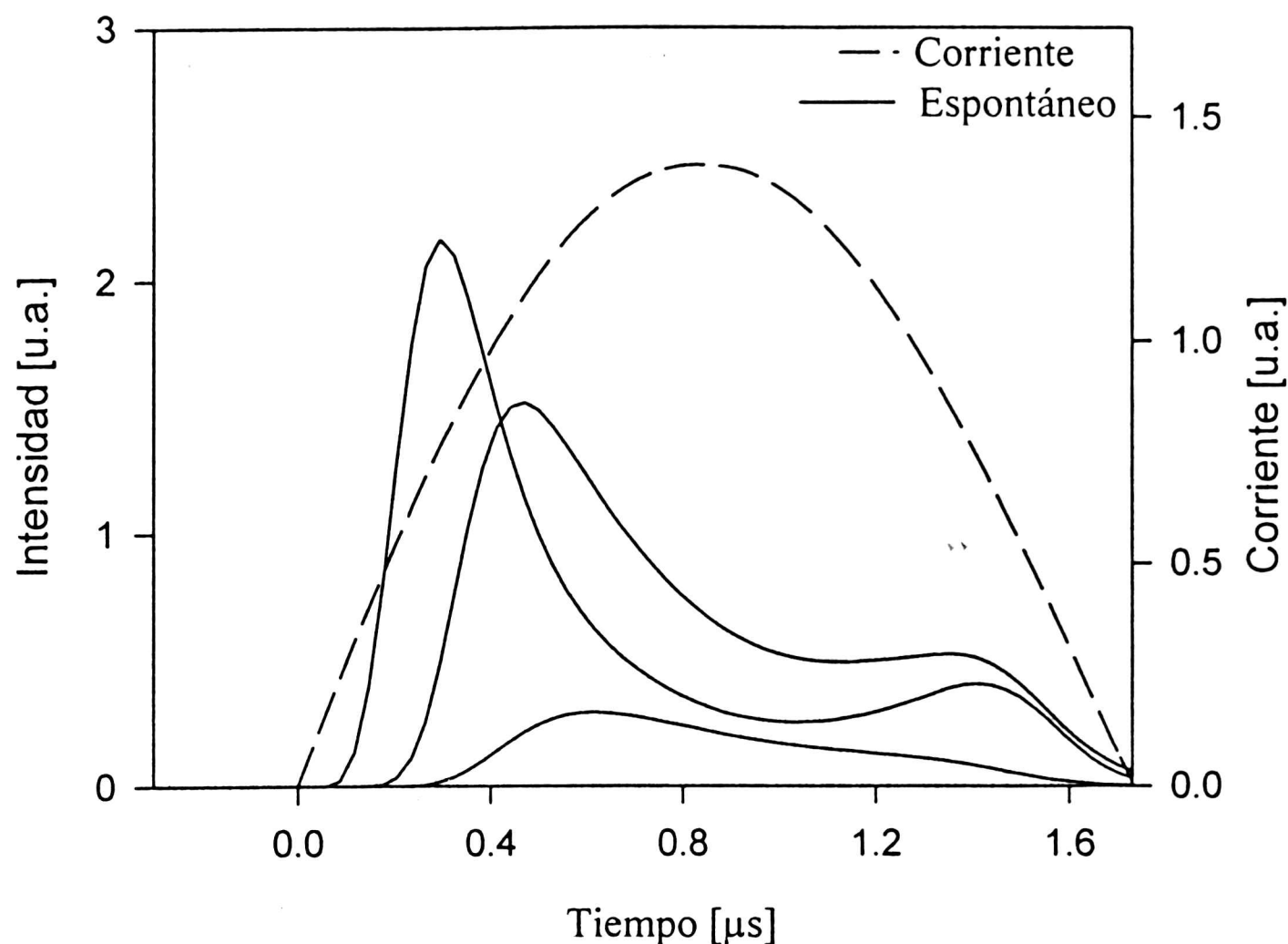


Figura 4.7: Evolución temporal calculada para distintos iones para: (a) Xe III, (b) Xe V, (c) Xe VII,  $T_e = 10^5$  K.

los de ionización produciendo una segunda crecida en la población, en especial en los iones más bajos puesto que allí se acumula la misma. Es importante destacar que al finalizar la corriente, queda una población no despreciable que es despoblada ahora por varios procesos, pero que no son analizados en el presente modelo.

Se bajó luego la temperatura electrónica a la mitad para analizar el límite de bajas energías. En ese caso se alcanza poblar hasta  $z = 5$  observándose además que en ambos casos las poblaciones de las especies iónicas más altas siguen al comportamiento temporal de la corriente como se analizará con mayor detalle a continuación.

Dado que la emisión espontánea de una línea es proporcional a su población, podemos analizar directamente su comportamiento temporal y compararla con los resultados experimentales obtenidos. En la Figura 4.7 se grafican resultados típicos de la distribución temporal de la emisión para distintos iones bajo condiciones de descarga típicas, comparables a los observados experimentalmente en la Figura 3.14.

La distribución temporal de la emisión calculada está determinada por el balance entre los procesos de ionización y los de recombinación para cada uno de

los iones. Los cálculos muestran que entre iones consecutivos existe un retraso en el comienzo de la emisión, respecto a la excitación. Dada la energía de la fuente de descarga, el proceso de ionización es realizado entre iones consecutivos. En principio sería esperable que éste tiempo fuera creciendo con el grado iónico debido a que los iones más altos tienen una energía de ionización mayor que los más bajos. Sin embargo, los cálculos muestran que éste fenómeno se ve compensado por el creciente número de electrones a medida que se ioniza más el plasma.

Durante la crecida de la corriente, los electrones transfieren la población desde los iones más bajos a los más altos. La población correspondiente a los grados iónicos menores del plasma, presentan un máximo al comienzo de la corriente y muestran luego un reducción relativa en su intensidad mayor que los estados más ionizados. Cuando la corriente comienza a disminuir, los procesos de cascada y recombinación compiten con los de ionización y excitación. Al finalizar la corriente, termina el proceso de bombeo, restando solamente emisión fluorescente durante un corto periodo debido a éstos procesos indirectos de excitación. Aun así, la emisión remanente es proporcionalmente mucho menor que lo mostrado en la Figura 4.5, para la misma región temporal. Esto es debido a que la población se concentra en el fundamental del ion y ya no queda energía para excitar a niveles más altos.

Un aumento en la tensión de descarga es equivalente a incrementar la temperatura electrónica. Entonces, cambiando ésta última es posible reproducir los resultados observados al modificar el primero. En la Figura 4.8 se muestran los resultados para una transición perteneciente al Xe VII, cuando  $T_e$  es aumentado desde  $7.5 \times 10^4$  K hasta  $1 \times 10^5$  K. En la curva (a), el proceso de ionización antes mencionado es el responsable de la disminución en la intensidad. Al disminuir la tensión de descarga y por lo tanto la temperatura electrónica (b), éste ion alcanza su máximo con la corriente y posee un perfil similar a ésta. Estos resultados concuerdan con lo observado experimentalmente para éste mismo ion (ver Figura 3.10).

A fin de reproducir el comportamiento observado al cambiar la presión (Figura 3.9), se deberá establecer su dependencia en el modelo. Como primera aproximación se supondrá que la temperatura electrónica  $T_e$  es proporcional al camino libre medio según:

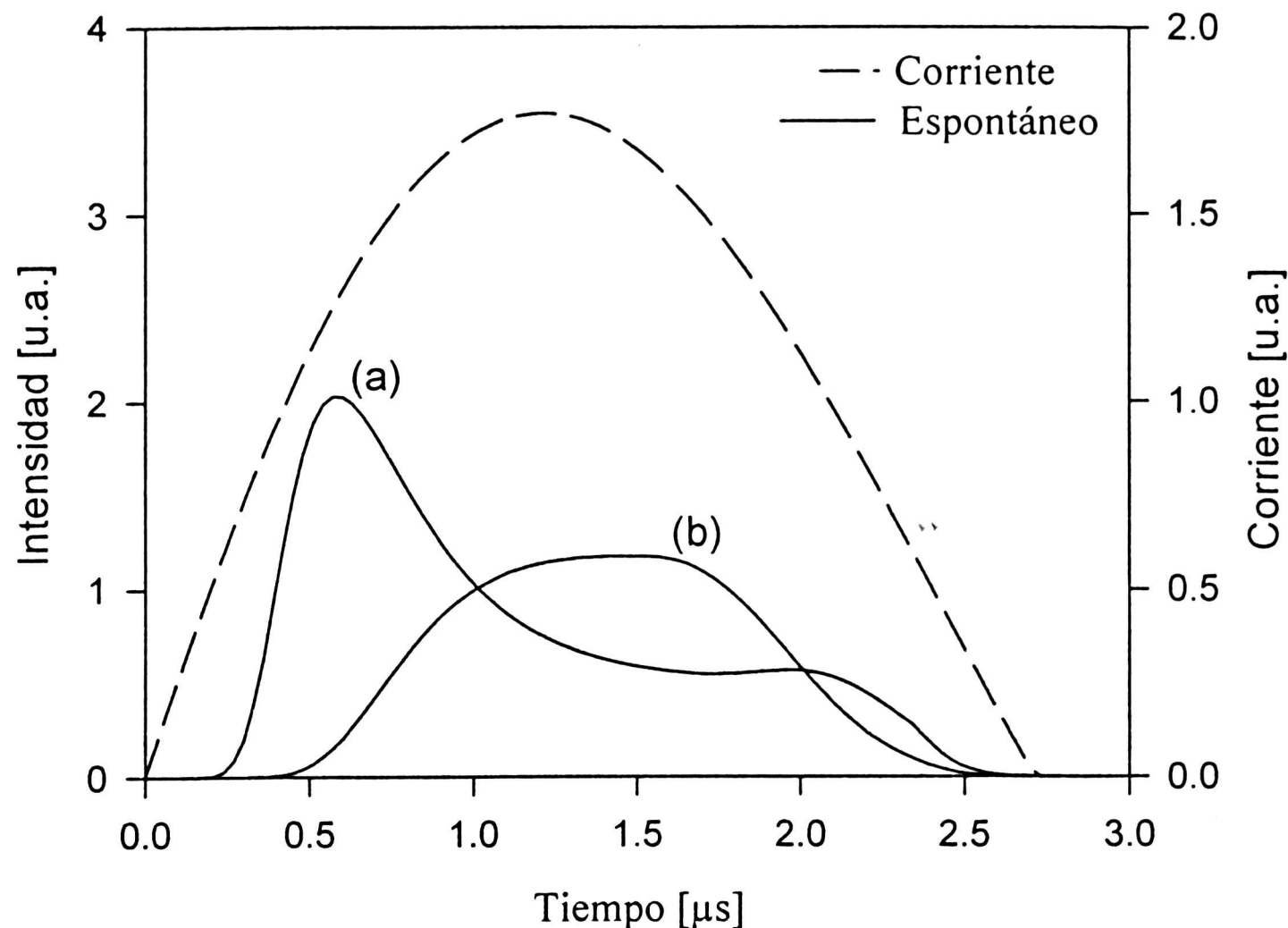


Figura 4.8: Comportamiento temporal de una transición perteneciente al Xe V con la tensión: (a)  $T_e = 10^5 K$ , (b)  $T_e = 7.5 \times 10^4 K$ .

$$\lambda_e = (N \langle \sigma_e \rangle)^{-1} \quad (4.8)$$

siendo  $N$  la densidad del gas y  $\langle \sigma_e \rangle$  la sección eficaz de colisión media. Esta última es calculada por medio de las expresiones semiempíricas para excitación e ionización (2.57) y (2.60) respectivamente, las que son a su vez dependientes de  $T_e$ . De ésta forma relacionamos numéricamente la presión (expresada aquí por  $N$ ), como función de la temperatura electrónica y el tiempo.

La Figura 4.9 muestran los resultados calculados para distintas presiones para una línea de Xe V. Bajo condiciones de descarga en las que se observa emisión láser, [curva (a)], la emisión aparece con un retraso de 180 ns respecto del principio de la corriente debido al tiempo necesario para poblar al Xe V. Luego, su disminución de intensidad es debida al vaciamiento de la población del ion mencionado previamente. Al comenzar a disminuir la corriente también lo hace la temperatura electrónica. Los términos de excitación y desexcitación alcanzan un equilibrio hasta que finalmente los

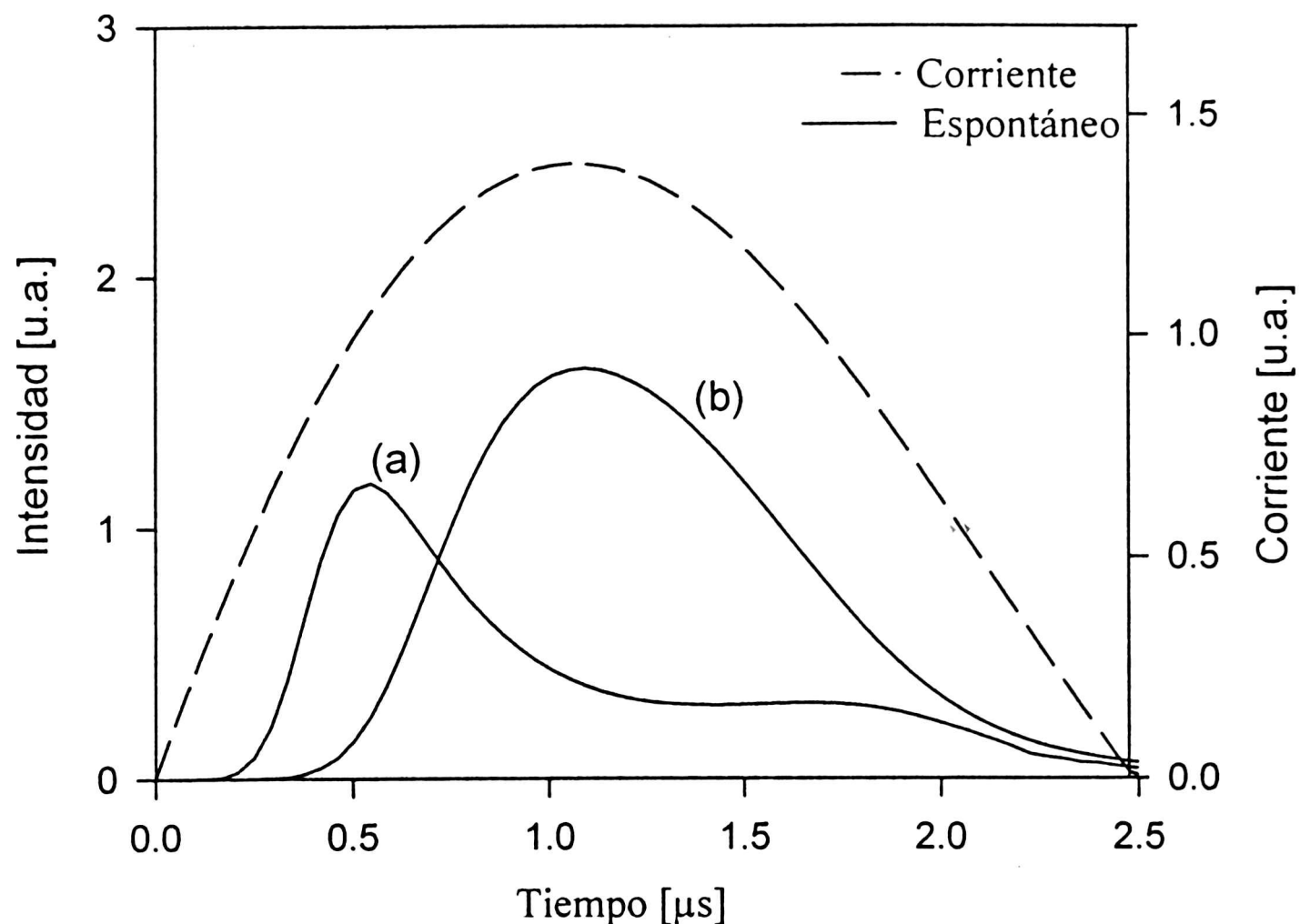


Figura 4.9: Variación calculada de la emisión espontánea con la presión para una transición perteneciente al Xe V. (a)  $p = 20$  mTorr, (b)  $p = 40$  mTorr.

procesos que enfrían al sistema hacen que comience a disminuir la densidad población excitada y la intensidad de la emisión. Al aumentar la presión [curva (b)], su dependencia con  $T_e$  hace que el bombeo disminuya y en consecuencia lo hace la pendiente de crecida de la emisión, aumentando su retraso. Bajo las condiciones aquí presentadas, el bombeo hacia iones mayores es mucho menor que en el caso anterior y la población alcanza su máximo con la corriente y decae siguiendo su forma.

Ya se describió en el Capítulo 3 los procesos utilizados para la asignación iónica. La variación en la intensidad en función de la energía de descarga, es utilizado habitualmente para realizar la asignación de las distintas transiciones a cada especie iónica. En general los iones más altos se observan a las presiones menores. Este hecho fue reportado por Duchowicz *et al.* [26], y sus resultados se presentaron en la Figura 3.6. Dado que el experimento utilizado en Ref. [26] es en esencia el mismo que el de ésta tesis, se analizará de manera teórica los resultados encontrados en ese trabajo. Se resuelve el sistema de ecuaciones para una temperatura electrónica de  $10^5$  K y

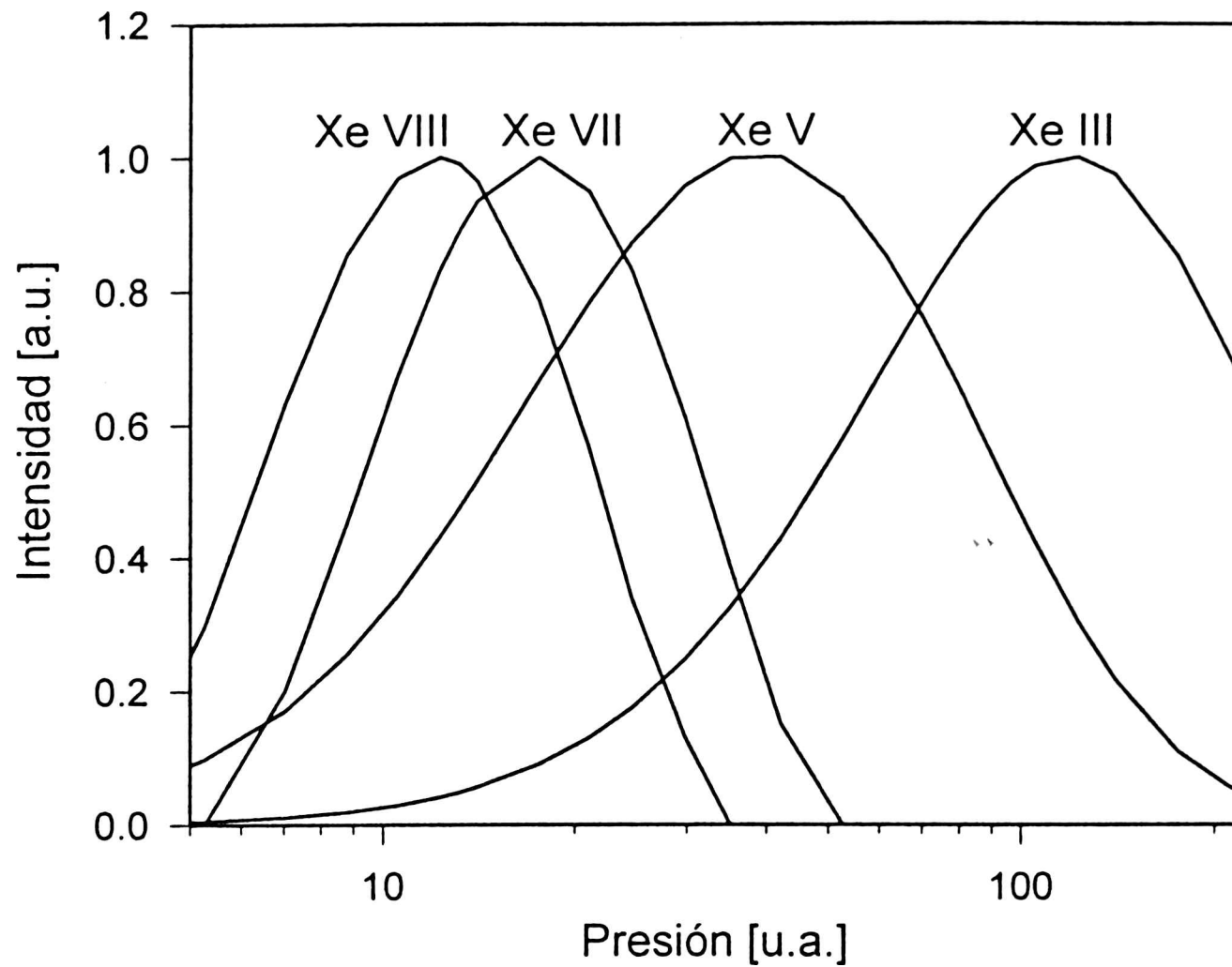


Figura 4.10: Intensidad normalizada de emisión para distintos iones en función de la presión..

una presión de 10 mTorr, variándose luego la presión para obtener las distintas condiciones de descarga. Las densidades de población resultantes se integran en el tiempo a fin de tener una estimación de la intensidad medida experimentalmente. Los resultados se presentan en la Figura 4.10, en donde se ha normalizado la intensidad para facilitar su comparación. Las predicciones teóricas son muy similares a lo obtenido experimentalmente y permite conocer el rango espectral de emisión para cada ion.

En resumen, el modelo propuesto que tiene en cuenta los principales mecanismos que se presentan para éste tipo de descargas, permiten sustentar los métodos empíricos para realizar la asignación iónica por los 2 métodos mencionados en el Capítulo 3. Las poblaciones teóricas tienen una distribución de intensidades en función de la presión del tipo gaussiana, con un ancho variable dependiendo de las condiciones de excitación. Puesto que todas las líneas analizadas pertenecientes al mismo ion tienen una distribución temporal similar, es posible realizar su asignación iónica de manera confiable. Esto se ve respaldado por el hecho que se encuentran sometidas a los mismos mecanismos de excitación-desexcitación y por lo tanto mues-

tran comportamientos semejantes.

## 4.3 Emisión estimulada

Los términos que dan lugar a la emisión láser, son incluidos en el sistema de ecuaciones de balance para la evolución temporal de las densidades de población propuesto previamente. Se analiza el comportamiento oscilatorio y se realiza un análisis resuelto en tiempo para distintas condiciones de excitación. Se calcula la ganancia en pequeña señal de varias líneas y se comparan con los resultados experimentales obtenidos.

### 4.3.1 Introducción

El proceso más importante y responsable de la excitación e ionización de los niveles es la colisión por impacto electrónico directo. Los cálculos Hartree-Fock relativistas realizados, muestran que la probabilidad de transición espontánea entre el nivel superior del láser es más grande con el nivel inferior, que con cualquier otro nivel al que pueda realizar una transición radiativa. Por otra parte el primero, se encuentra conectado con niveles de mayor energía con intensidades de oscilador muy grandes (del orden de la unidad). Dado que nos restringimos a transiciones ópticamente permitidas, no es posible bombear desde el fundamental del ion hasta el nivel superior de la transición láser. En efecto, aun en el caso en que la transición es permitida las intensidades de oscilador son muy pequeñas, y la tasa de bombeo calculada es despreciable frente a otros mecanismos de desexcitación, como por ejemplo el radiativo. Entonces, el nivel superior deberá estar poblado fundamentalmente a través de procesos colisionales y radiativos que le llegan desde niveles energéticamente más altos. Por éstas causas es que el modelo de excitación de 4 niveles para la emisión del láser es el más adecuado.

Para que sea posible invertir la población deberán satisfacerse las condiciones analizadas en el Capítulo 2. Del modelo teórico propuesto en la sección anterior, la probabilidad de excitación por impacto electrónico directo está dada por:  $n_e \langle \sigma v \rangle \sim$

$7 * 10^{15} \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ . En éste caso para que sea válida la aproximación propuesta en la ecuación (2.91),  $\tau_4$  tendrá que ser del orden de  $10^{-10} \text{ s}$  o menor. Para satisfacer la condición impuesta por la expresión (2.94) es necesario que el nivel  $E_4$  decaiga preferentemente sobre  $E_3$ . Como se mencionó más arriba, los cálculos Hartree-Fock mostraron que éste requisito es satisfecho plenamente. Finalmente para invertir la población debe suceder que  $\beta \ll 1$  en la ecuación (2.95), relación que puede obtenerse a partir de la Tabla 4.3. Por ejemplo si analizamos su valor para una transición intensa:  $4954.13 \text{ \AA}$ , obtenemos:

$$\beta = \tau_{21}/\tau_{32} = \frac{0.04 \text{ ns}}{38.3 \text{ ns}} = 10^{-3} \ll 1 \quad (4.9)$$

por lo que la condición para la inversión se cumple perfectamente. Estas condiciones que se satisfacen para todas las transiciones láser analizadas teóricamente, pueden usarse como un criterio de búsqueda de emisión estimulada para otras transiciones.

### 4.3.2 Ecuaciones para la cavidad

A fin de excitar los niveles que producen la inversión de población, se tomaron en cuenta los siguientes procesos: impacto electrónico, decaimiento radiativo y colisional, recombinación y procesos de cascada. En la figura 4.11, se muestra el esquema general de niveles propuesto en éste modelo para la excitación de una transición láser.

El nivel  $E_4^z$  es excitado por impacto electrónico desde el fundamental  $E_1^z$  del ion en uno o varios pasos dependiendo para cada caso de: las paridades de los niveles  $E_1^z$  y  $E_4^z$ , de las intensidades de oscilador involucradas, etc.  $E_4^z$  es también poblado por medio de procesos de recombinación (dependiendo en cada caso en particular); en general, en varios pasos desde el fundamental del ion superior. Las poblaciones correspondiente a  $E_4^z$  y  $E_3^z$  están conectadas por decaimiento radiativo y procesos de excitación-desexcitación por impacto electrónico directo.  $E_3^z$  decae fundamentalmente de manera estimulada sobre  $E_2^z$ , Este último finalmente decae de manera radiativa y colisional sobre  $E_1^z$ , que es el nivel fundamental del ion. En todos los casos el tiempo de vida calculado correspondiente a  $E_3^z$  es mucho mayor que el correspondiente a  $E_2^z$

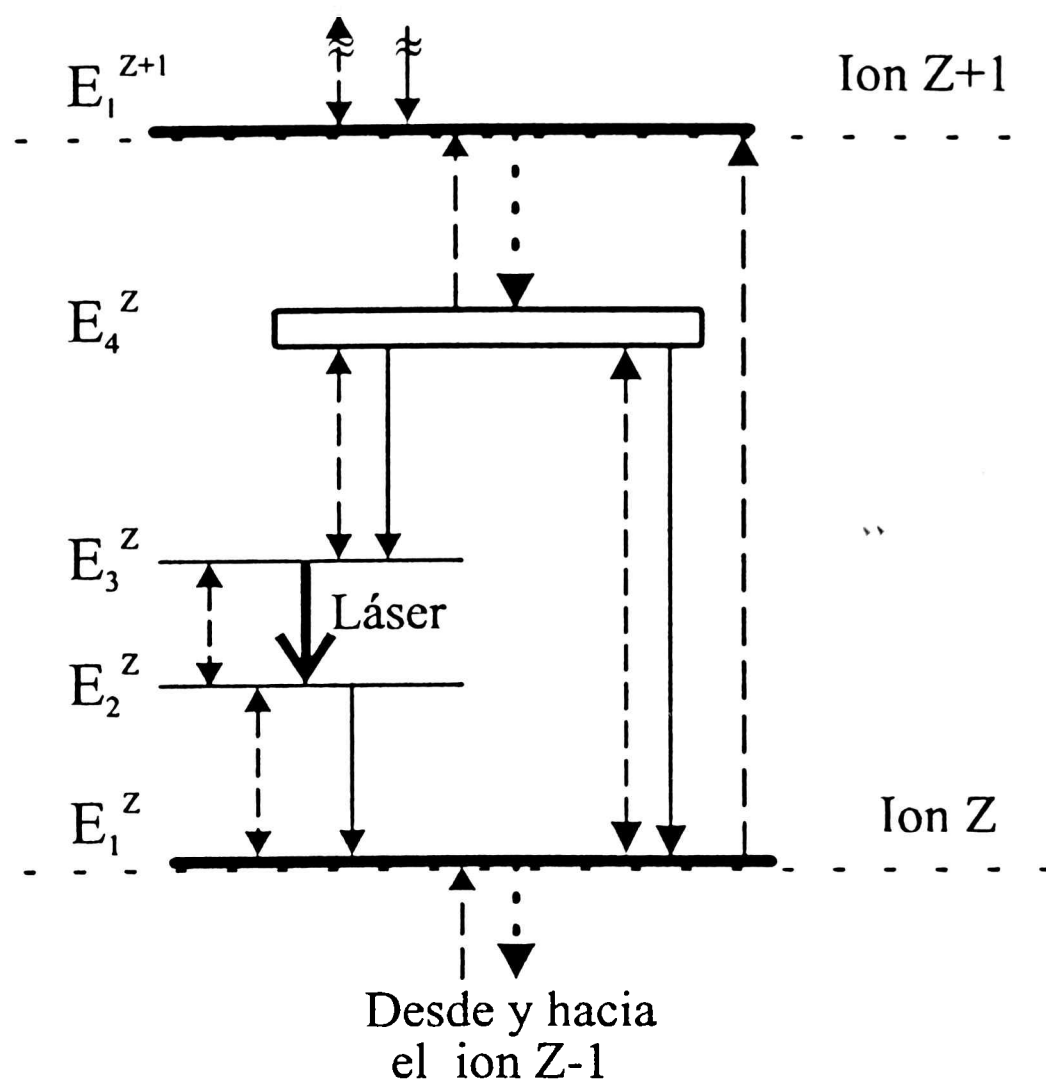


Figura 4.11: Modelo simplificado de excitación de los niveles de energía del láser. Línea sólida: canales de decaimiento radiativo; línea punteada: procesos de recombinación; línea de rayas: procesos de excitación, desexcitación e ionización.

(Tabla 4.3), por lo que la densidad de población del primero es mucho más grande que la del segundo.

Las ecuaciones de balance del sistema pueden deducirse a partir de las ecuaciones: (2.105), (2.108) y (2.109). Si  $N_3^z$  y  $N_2^z$  representan las densidades de población de los niveles superiores e inferiores respectivamente correspondiente a cada una de las líneas láser, y si  $n^z$  es el número total de fotones en la cavidad, su evolución temporal satisface el siguiente sistema de ecuaciones:

$$\frac{dN_3^z}{dt}_{Est.} = \frac{dN_3^z}{dt}_{Esp.} + Kn^z[N_2^z - N_3^z] \quad (4.10)$$

$$\frac{dN_2^z}{dt}_{Est.} = \frac{dN_2^z}{dt}_{Esp.} + Kn^z[N_3^z - N_2^z] \quad (4.11)$$



$$\frac{dn^z}{dt} = V_c K n^z [N_3^z - N_2^z] + V_c K N_3^z - \gamma_c n^z \quad (4.12)$$

donde  $\gamma_c$  es la inversa del tiempo de vida de los fotones en la cavidad,  $V_c$  es el volumen de la cavidad y  $K$  la constante de acople que se puede reescribir como:

$$K = A_{32}^z \left( 4\pi^2 V_c \frac{1}{\lambda^3} \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \right)^{-1} \quad (4.13)$$

donde  $\lambda$  es la longitud de onda de la transición y  $\Delta\lambda/\lambda$  el ancho de línea relativo.

Es posible realizar una estimación de éstos parámetros a partir de los resultados obtenidos previamente:  $A_{32}$  es del orden de  $10^7 \text{ s}^{-1}$  para las transiciones que dan lugar a la emisión láser, el volumen de la cavidad es aproximadamente  $10 \text{ cm}^3$  (dependiendo del tubo utilizado) y el ancho de línea  $\Delta\lambda$  es de  $0.4 \text{ \AA} = 4 \times 10^{-9} \text{ cm}$ , por lo que obtenemos que el número de modos en la cavidad  $p$  [ecuación (2.104)] es del orden de  $10^{11}$  y  $K \sim 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ .

### 4.3.3 Procesos de bombeo

Con el fin de conocer los principales mecanismos que dan lugar a la inversión de población, el sistema de ecuaciones (4.7) fue resuelto bajo condiciones de descarga típicas incluyendo a todas las especies desde el Xe I al Xe IX. Se realizaron cálculos ab-initio Hartree-Fock relativistas para todos los iones desde el Xe III hasta el Xe IX inclusive. Si bien es cierto que no hay evidencia de emisión estimulada perteneciente al Xe VI y que las transiciones láser del IX no pertenecen a la región espectral analizada, se debieron incluir para calcular los coeficiente de los procesos de recombinación sobre los iones correspondientes. Se incluyeron todas las configuraciones relevantes, que presentan interacción con aquellas a las que pertenecen los niveles que dan lugar a la emisión estimulada. De los resultados obtenidos, aquellos niveles que presentaron intensidades de oscilador más grandes con los niveles a los que pertenecen las líneas láser fueron incluidos en el sistema de ecuaciones (4.7).

No se consiguió invertir la población de los niveles pertenecientes al Xe II, debido fundamentalmente a las energías de descarga empleadas.

Para el xenón dos veces ionizado, se estudió la transición  $4060.45 \text{ \AA}$  por ser la más intensa de las transiciones láser perteneciente a éste ion. Los cálculos indican

que es poblada fundamentalmente por recombinación del nivel fundamental del Xe IV:  $5s^25p^3\ ^4S_{3/2}$ .

Del Xe V se analizaron las 13 transiciones clasificadas en el presente trabajo, muchas de cuales son intensas. En todos los casos, el nivel superior pertenece a la configuración  $5s^25p4f$ . Este es poblado fundamentalmente por cascada desde las configuraciones:  $5s5p^24f$  y  $5s^25p7d$ , y éstas a su vez son pobladas por impacto electrónico desde el fundamental del ion en un proceso de varios pasos, dado que según los cálculos no están conectadas ópticamente directamente con el fundamental.

El Xe VII posee 2 transiciones que comparten el mismo nivel superior:  $5s4f\ ^1F_3$ . Este es poblado tanto por decaimiento radiativo desde  $E_4$  como por recombinación del fundamental del Xe VIII, aunque los resultados muestran que éste último proceso dominante.

Finalmente el Xe VIII es poblado fundamentalmente por un intenso decaimiento radiativo desde las configuraciones superiores, con probabilidad de transición espontánea del orden de  $10^{12}\text{ s}^{-1}$ . A su vez esos niveles son poblados por recombinación desde la configuración  $4d^{10}$  perteneciente al Xe IX.

#### 4.3.4 Ganancia del láser

##### Medidas de ganancia

Cuando el sistema está funcionando como láser en régimen, la ganancia  $G_{sat}$  iguala a las pérdidas totales  $P$ , en este caso, a partir de la relación (2.119), para la ganancia para una línea ensanchada inhomogéneamente obtenemos:

$$I = I_s \left( \frac{G_0^2}{P^2} - 1 \right) \quad (4.14)$$

Si aumentamos las pérdidas en una cantidad  $\Delta P$ , la intensidad  $I$  cambia según:

$$\Delta I = I_s G_0^2 \frac{2\Delta P}{P(P + \Delta P)^2} \quad (4.15)$$

Si dividimos las pérdidas en: las producidas por el sistema (espejos, difracción, etc)  $P_a$ , y una pérdida externa introducida dentro de la cavidad  $P_r$ :

$$P = P_a + P_r \quad (4.16)$$

Entonces el cociente entre la intensidad máxima  $I_{\max}$  cuando  $P_r = 0$  (es decir sin pérdidas externas), e  $I$  cuando se introduce la pérdida  $P_r$ , será:

$$\frac{I}{I_{\max}} = \frac{(G_0^2 - P^2) P_a^2}{(G_0^2 - P_a^2) P^2} \quad (4.17)$$

A partir de la expresión anterior, nos es posible calcular la ganancia en pequeña señal  $G_0$  introduciendo una pérdida en la cavidad. Para ello, se hizo uso de filtros neutros con distintos índices de absorción. Estos se midieron por medio de un espectrógrafo Beckman, y se introdujeron en la cavidad de manera perpendicular al eje del tubo.

Con el láser funcionando la intensidad de salida es medida directamente en el osciloscopio como una tensión  $V_{\max}$ , luego se introduce en la cavidad una pérdida conocida  $P_r$  y se determina nuevamente  $V$ ; el cociente de las tensiones es proporcional al cociente de intensidades en la expresión (4.17). De esta forma se miden 3 de las 5 variables de la ecuación, por lo que es necesario hacer uso de por lo menos 2 medidas de intensidades para encontrar una solución única para la ganancia en pequeña señal  $G_0$ .

Las medidas se realizaron sólo sobre aquellas líneas que son intensas para nuestras condiciones experimentales, puesto que es necesario tener una emisión estable en el tiempo. Por otra parte, las líneas más débiles no son posibles medirlas con éste método puesto que dejan de emitir al introducirles una pérdida pequeña, dada la alta sensibilidad de la intensidad con la pérdida introducida (ec. 4.15).

Se hizo uso de un par de espejos para la región visible y otro para la ultravioleta. Las condiciones de excitación utilizadas fueron las mismas para todos los casos para poder hacer comparables los registros obtenidos. Los resultados de las medidas pueden verse en la Tabla 4.5, junto con las de otros autores en condiciones similares a las nuestras: Ref. [68] y Ref. [13].

### Cálculo de la ganancia

Reescribiendo la expresión (2.88), para la ganancia en pequeña señal en función de la probabilidad espontánea de emisión (2.78) obtenemos:

$$G_{32} = \frac{1}{8\pi c} \left( \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \right)^{-1} A_{32} \lambda^3 g_3 \left( \frac{N_{3_{\max}}}{g_3} - \frac{N_{2_{\max}}}{g_2} \right) \quad (4.18)$$

donde  $A_{32}$  es la probabilidad de transición radiativa,  $N_{i_{\max}}$  y  $g_i$  son las densidades de población máximas y los pesos estadísticos correspondientes al nivel  $i$ ,  $\Delta\lambda/\lambda$  es el ancho de línea relativo y  $c$  la velocidad de la luz.

$A_{32}$  fue tomado a partir de los cálculos Hartree-Fock relativistas presentados en la Tabla 4.3. El ancho de línea relativo se estimó teniendo en cuenta el ensanchamiento por efecto Doppler y por colisiones entre electrones con iones según se analizó previamente.

Para el cálculo de las densidades de población, se resolvió el sistema de ecuaciones (4.7) incluyendo los principales niveles que afectan aquellos que dan lugar a la emisión láser, pero sin tener en cuenta los efectos por emisión estimulada, dado que éste es un cálculo realizado a pequeña señal.

Los resultados obtenidos tienen muy buen acuerdo con las medidas realizadas, como se pueden ver en la Tabla 4.5.

Para el Xe VIII las probabilidades de transición son menores que las correspondientes a otros iones (ver Tabla 4.3), sin embargo esto es compensado por la intensa contribución radiativa y colisional como se mencionó al discutir los procesos de bombeo.

Las altas ganancias obtenidas para alguna de las transiciones, como la  $\lambda = 3645.48 \text{ \AA}$ , permite observar experimentalmente y bajo condiciones apropiadas amplificación aun con un único espejo, como se muestra en la Figura 3.22.

### 4.3.5 Análisis de la distribución temporal

#### Introducción

Con el fin de analizar las características temporales observadas se resolvió las ecuaciones de balance para la emisión espontánea (4.7), utilizando valores típicos

$\lambda$ [Å] (aire)	Ganancia medida $10^{-2}$ [dB/m] y {Refelctividades de los espejos, adelante - atrás [%]}			Ganancia calculada [dB/m]
	Ref. [68]	Ref. [13]	Este trabajo	
3246.99	-	-	2.8 {70-95}	3.0
3350.03	-	-	2.7 {85-99}	2.7
3645.48	-	-	6.1 {94-100}	6.5
3803.26	-	-	2.5 {93-96}	2.2
4060.45	-	-	2.5 {75-85}	2.5
4954.13	6.3 {88-100}	7.3 {84-99}	6.2 {85-99}	6.1
5007.80	2.3 {88-100}	-	2.6 {85-99}	2.7
5260.19	3.6 {88-100}	4.0 {85-99}	2.9 {85-99}	3.5
5352.92	5.2 {88-100}	6.4 {85-99}	4.5 {85-99}	5.0
5394.62	3.6 {88-100}	4.4 {84-99}	3.6 {85-99}	3.5
5955.67	-	2.7 {75-99}	2.4 {80-99}	2.3

Tabla 4.5: Ganancia en pequeña señal medida y calculada de las transiciones láser más intensas observadas

de los parámetros de descarga. Todos los niveles involucrados en los procesos de excitación y desexcitación que dan lugar a la acción láser fueron incluidos. La temperatura electrónica fue aumentada hasta que el comportamiento para la emisión espontánea resultante, presentara el mismo perfil que el observado experimentalmente. Luego los términos estimulados expresados en las ecuaciones (4.10), y (4.11) fueron incluidos en el sistema de ecuaciones (4.7), y el conjunto completo fue resuelto numéricamente junto a la ecuación para los fotones (4.12) y la constante de acople (4.13).

Comportamiento oscilatorio

Dada la información experimental obtenida, se analizará la posibilidad de tener oscilaciones según el modelo teórico propuesto. Haciendo uso de un análisis lineal, se obtuvo que la frecuencia de oscilación se expresa por la ecuación (2.123),

siempre y cuando la probabilidad de decaimiento total  $\gamma$  sea menor que el coeficiente  $\gamma_c$ . A partir del modelo presentado para la emisión espontánea tenemos:

$$\gamma = A_{ij} + \langle \sigma_{ij} v \rangle n_e \quad (4.19)$$

es decir la probabilidad de desexcitación total es igual a la suma de la radiativa y la debida a las colisiones. Tenemos:

$$\gamma \sim [10^7 + 10^{-9} * 7 \times 10^{15}] \text{ s}^{-1} \simeq 1 \times 10^7 \text{ s}^{-1} \quad (4.20)$$

donde el valor del coeficiente debido a colisiones fue estimado a partir de los cálculos Hartree Fock para el nivel  $E_3$ , según se discutió previamente. Para calcular  $\gamma_c$  se deberá tener en cuenta que si la cavidad tiene 1.5 m de longitud, el tiempo para hacer un recorrido de ida y vuelta será:  $\tau = (2 \times 1.5 / 3 \times 10^8) \text{ s} = 1 \times 10^{-8} \text{ s}$ . Entonces, su inversa satisface:

$$\gamma_c = 10^8 \text{ s}^{-1} > \gamma = 10^7 \text{ s}^{-1} \quad (4.21)$$

Es decir que la solución a mi sistema puede tener oscilaciones. En éste caso la frecuencia de oscilación estará dada según 2.123 por:

$$\omega_{osc} = \left[ (r - 1) \gamma \gamma_c - \left( \frac{r \gamma}{2} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (4.22)$$

Si nos encontramos cerca del umbral  $r \sim 1.5$  y  $\gamma_c = 10^8 \text{ s}^{-1}$  entonces, la separación entre los sucesivos picos estará dada por  $\tau = 2\pi / \omega_{osc} = 280 \text{ ns}$ , resultados en acuerdo con lo obtenido experimentalmente (Figura 3.16).

De éste modelo simplificado es posible deducir la dependencia de las oscilaciones, con la probabilidad de emisión espontánea. En el caso de las transiciones pertenecientes al Xe VIII,  $A_{32}$  es un orden menor que para otros iones. En éste caso, el valor de  $\gamma$  disminuye y el número de oscilaciones crece, como se deduce a partir de la ecuación (2.124). El coeficiente de amortiguamiento de las oscilaciones es directamente dependiente de la probabilidad de desexcitación total  $\gamma$  y al bombeo normalizado  $r$ . Este último, también muestra que el número de oscilaciones aumenta al acercarnos al umbral.

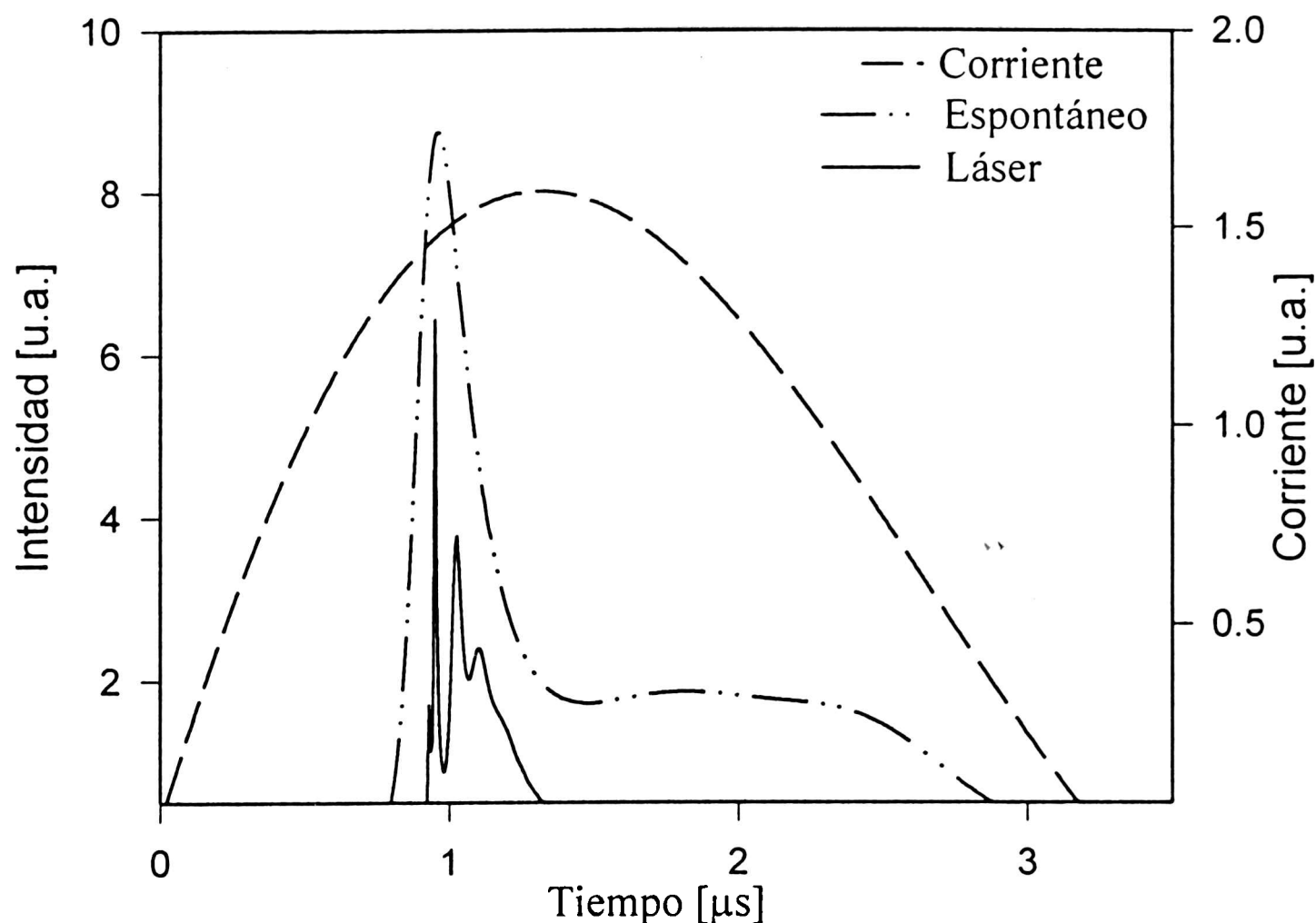


Figura 4.12: Comportamiento oscilatorio para la  $\lambda = 3350.03 \text{ \AA}$  (Xe VIII).

La resolución del sistema de ecuaciones para la emisión estimulada, muestra que las oscilaciones dependen fuertemente de las tasas de bombeo de los niveles. Se obtuvo también que bajo idénticas condiciones, las transiciones con menor probabilidad de transición radiativa poseen un número más grande de oscilaciones.

La Figura 4.12 muestra la evolución temporal calculada para la emisión espontánea y láser correspondiente a la transición  $3350.03 \text{ \AA}$  perteneciente al Xe VIII, resultados que coinciden los presentados en la Figura 3.16 para la misma línea. La distribución temporal de la densidad de población sin incluir la cavidad, muestra para éste caso que la población está siendo transferida hacia iones mayores según fue analizado anteriormente. Sin embargo, la emisión láser se encuentra cerca del umbral debido a la menor probabilidad de transición  $A_{32}$ .

Se observó que las oscilaciones aparecen fundamentalmente cuando el sistema está alineado de manera óptima. Es posible reproducir éste comportamiento controlando en nuestro modelo la inversa del tiempo de vida de los fotones en la cavidad representado por  $\gamma_c$ . En la Figura 4.13, se muestran los resultados obtenidos

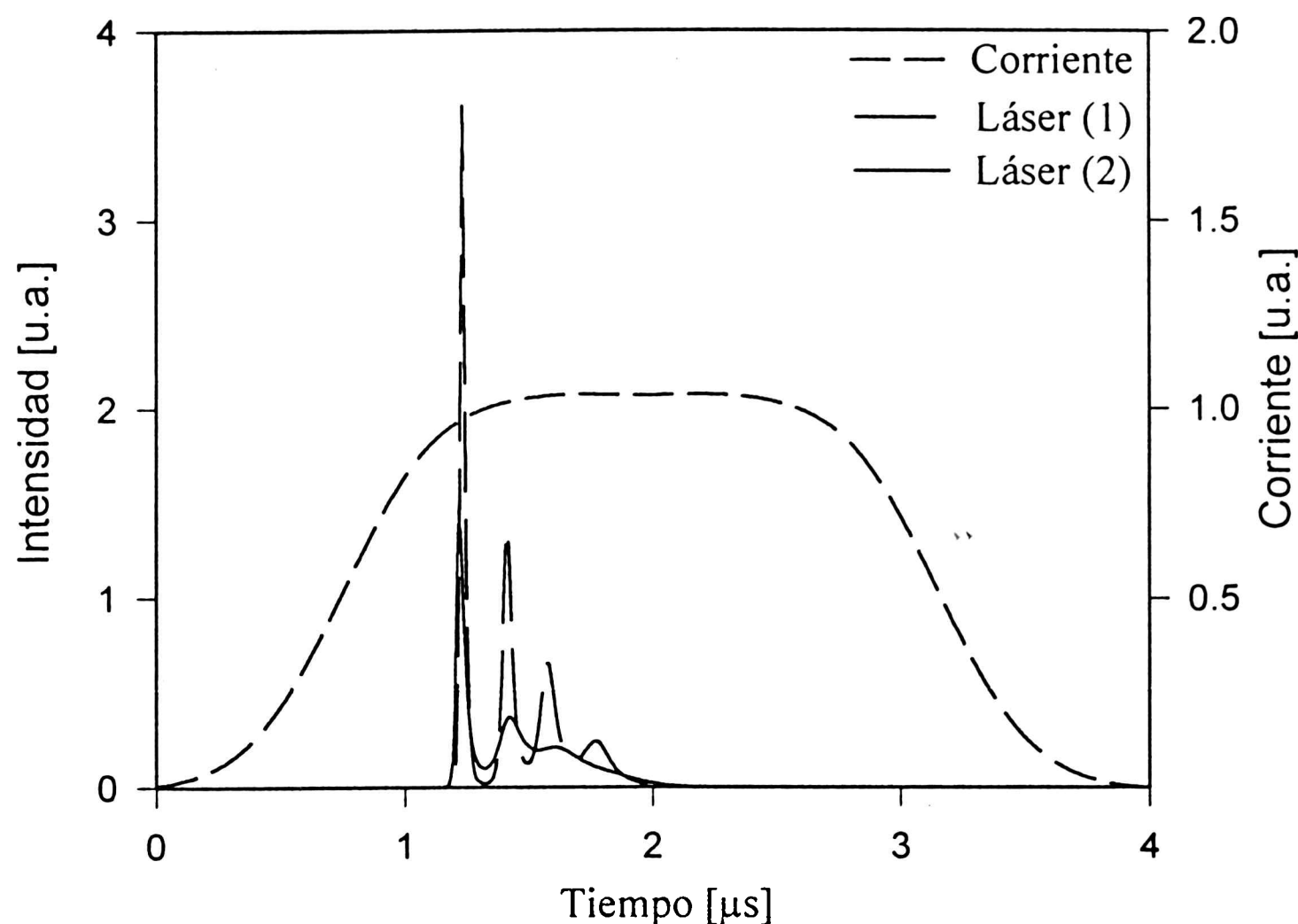


Figura 4.13: Oscilaciones de la emisión para distintas alineaciones variando el tiempo de vida de los fotones en la cavidad: (1) línea de rayas  $\gamma_c = 10^7 \text{ s}^{-1}$ , (2) línea continua  $\gamma_c = 10^8 \text{ s}^{-1}$

para la línea  $4954.13 \text{ \AA}$  perteneciente al Xe V, cuando éste parámetro es aumentado un orden de magnitud.

### Dependencia de la emisión con los parámetros

Según los cálculos presentados en la Tabla 4.3, el tiempo de vida del nivel superior láser  $E_3$  es por lo menos un orden superior que el nivel  $E_2$ , y 2 o 3 órdenes mayor en las transiciones más intensas observadas. A partir de eso es posible suponer que la población del nivel  $E_3$  del láser gobierna su evolución temporal como se había inferido a partir de las medidas realizadas.

En general, al aumentar la energía gradualmente desde valores por debajo del umbral hasta alcanzarlo, se observa que la emisión estimulada consiste en un único pulso (Figura 4.14). Del análisis con su espontáneo, se deduce que cerca del máximo del mismo se alcanza el umbral para invertir la población. Puesto que la corriente ya alcanzó su máximo, la disminución en la temperatura electrónica es la causa de la



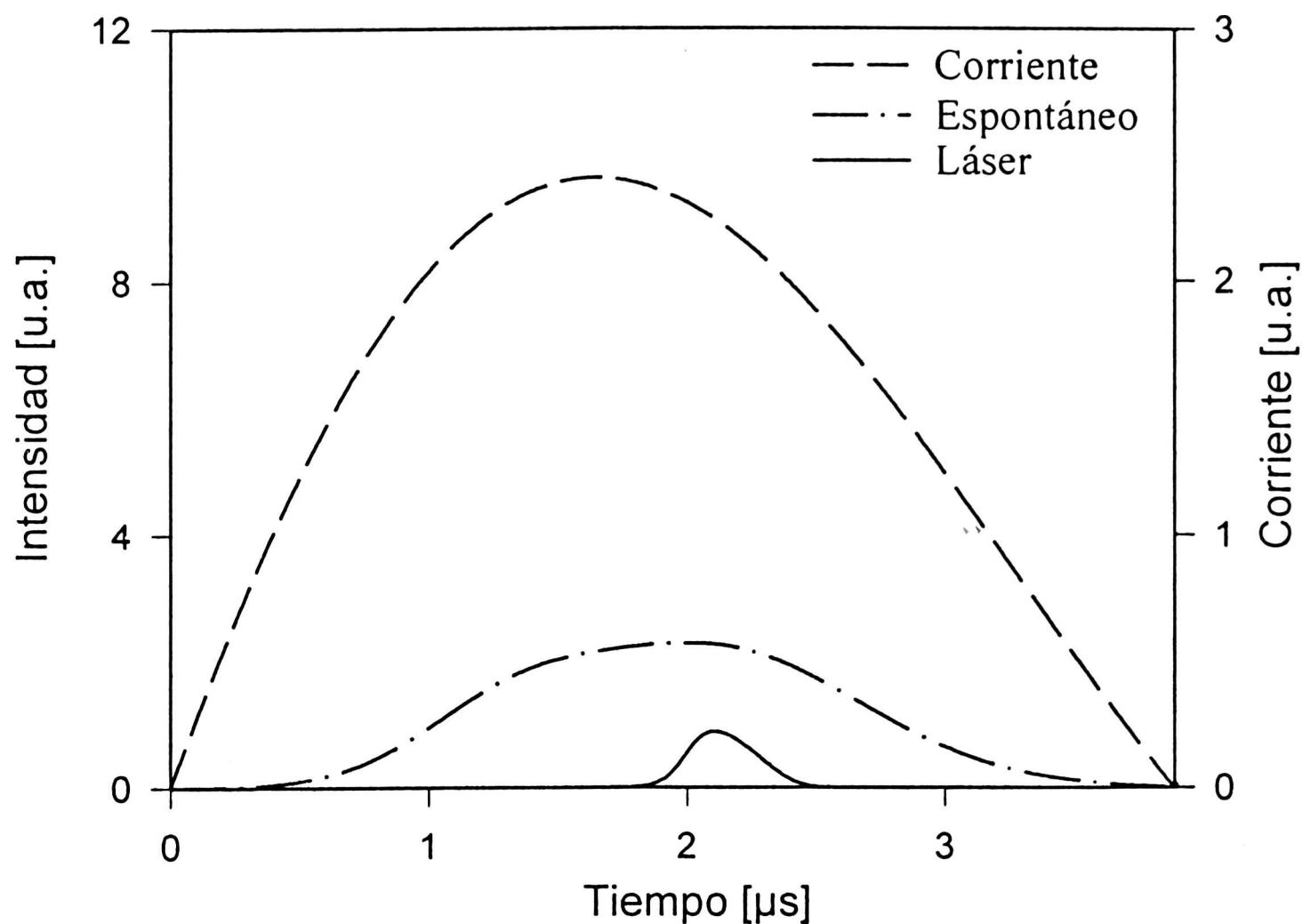


Figura 4.14: Emisión estimulada cerca del umbral y espontáneo correspondiente para la transición 4954.13 Å (Xe V);  $T_e = 7.5 \times 10^4$  K.

pérdida de emisión.

Luego, al continuar aumentando  $T_e$  desde los valores anteriores, para algunas transiciones la emisión sigue el comportamiento de la emisión espontánea. La Figura 4.15 muestra la distribución temporal espontánea calculada para una línea perteneciente al Xe VII y la estimulada para la línea 3645.48 Å, reproduciéndose los resultados experimentales observados en la Figura 3.19. En consecuencia los distintos comportamientos mostrados previamente pueden analizarse a la luz de los presentes cálculos. Para bajas energías de excitación, la distribución temporal del espontáneo sigue al pulso de corriente como se muestra en las Figuras 4.8 (b) y 4.9 (b), debido a que recién se comienza a poblar el ion; la emisión láser comienza a aparecer (umbral) y típicamente se observa un único pulso como se muestra en la Figura 4.14. Al aumentar la energía de excitación, la población de cada ion comienza a ser transferida al inmediatamente superior como se muestra en la Figura 4.5. Dado que el nivel superior  $E_3$  es el que gobierna el comportamiento del láser, es esperable obtener una

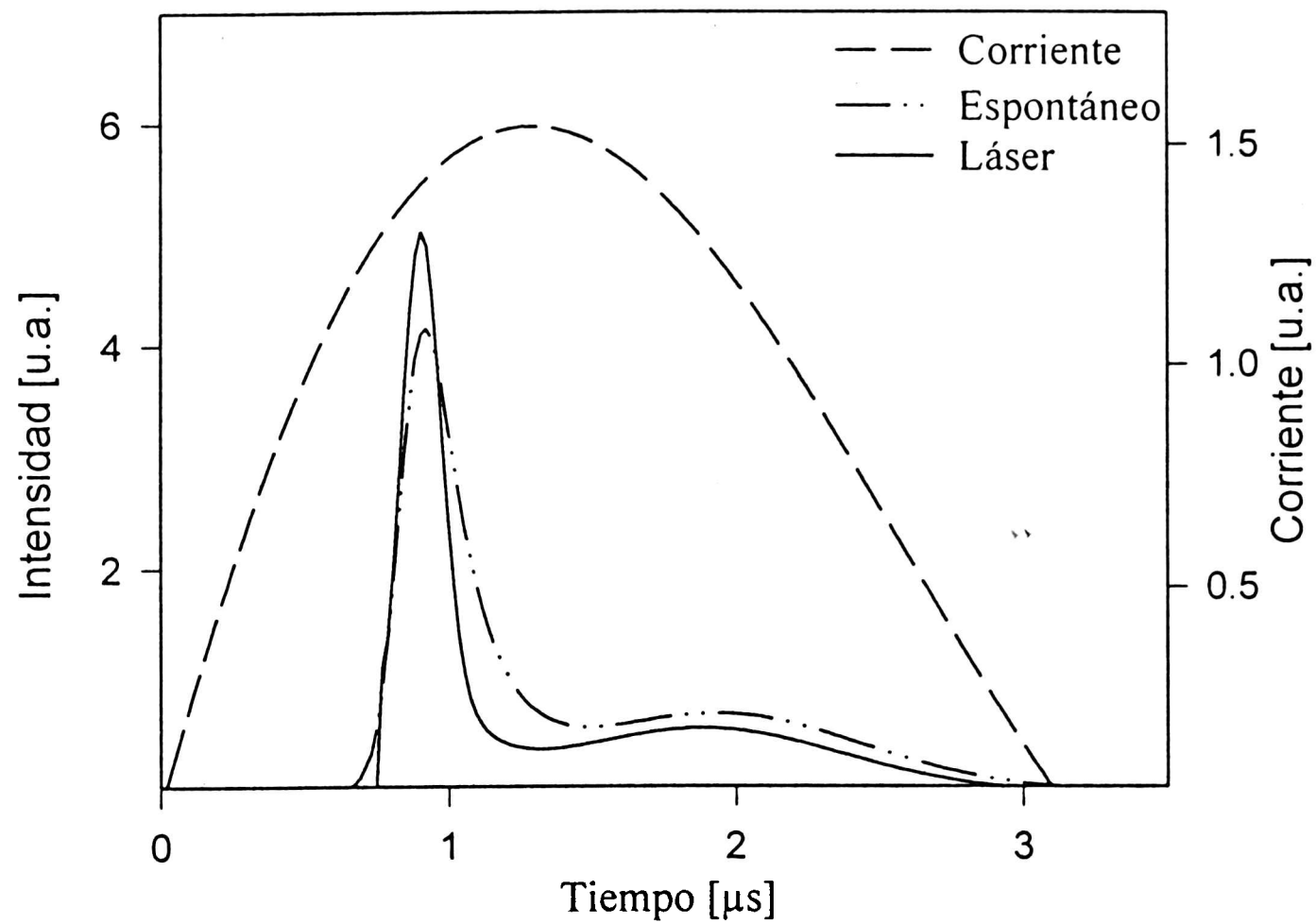


Figura 4.15: Evolución temporal de la transición  $\lambda = 3645.48 \text{ \AA}$  (Xe VII) espontánea y láser.  $T_e = 9 \times 10^4 \text{ K}$

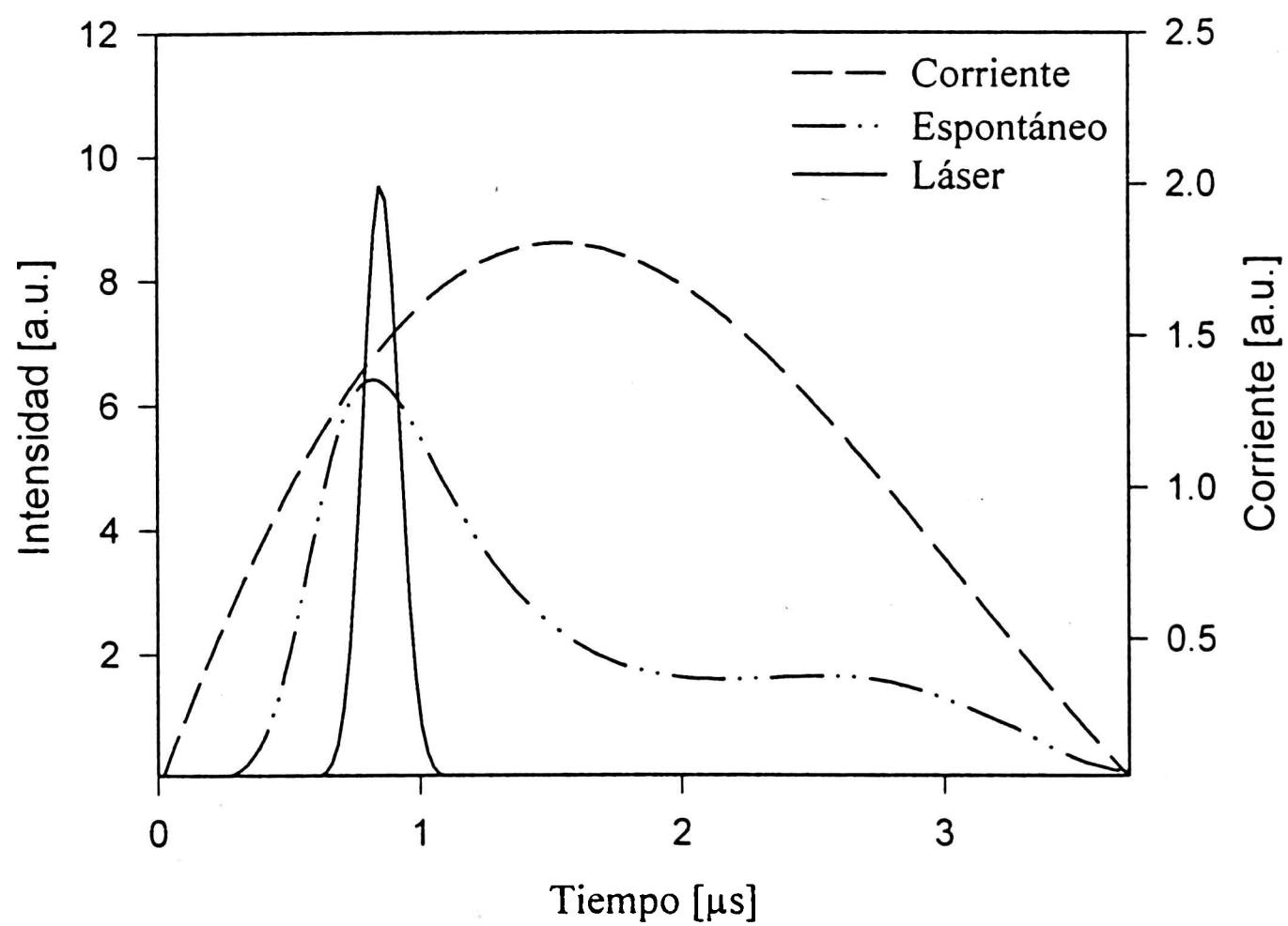


Figura 4.16: Emisión láser y espontánea, correspondiente a la transición  $3803.26 \text{ \AA}$  (Xe V), bien por encima del umbral ( $T_e = 9 \times 10^4 \text{ K}$ ).

emisión cuya distribución sea proporcional al mismo, dependiendo siempre del nivel umbral para cada caso (Figura 4.15).

De ésta forma, es posible encontrar el rango óptimo de funcionamiento para cada línea y reproducir los resultados obtenidos para la transición  $3645.48 \text{ \AA}$ , en la que un alargamiento en la emisión espontánea se reflejó en la estimulada (ver Figura 3.23). Aumentando el bombeo bien por encima del umbral, el despoblamiento del ion hace que la emisión se concentre en el pico del espontáneo, durante la crecida de la corriente. La Figura 4.16 muestra éste comportamiento para una transición perteneciente al Xe V, similar a la observada experimentalmente en la Figura 3.21 perteneciente al Xe III. Debido a que bajo nuestras condiciones experimentales ésta transición ( $4060.45 \text{ \AA}$ ) se encuentra siempre bien por encima del umbral, no se observó una distribución temporal doble.

## Capítulo 5

# Conclusiones Generales

Se realizó un extenso estudio experimental por medio de espectroscopía resuelta en tiempo de la emisión del láser múltiplemente ionizado de xenón. Este abarcó distintos aspectos de la emisión para varias especies iónicas. Las características más importantes observadas fueron las siguientes: la radiación presentó un retraso creciente en su comienzo con el grado iónico, respecto al inicio del pulso de corriente bajo las mismas condiciones experimentales; se observó una distribución temporal de doble pulso cuando el sistema operaba cerca del umbral y un patrón de multipulsos en algunos casos. Se analizó también el comportamiento en función de los parámetros experimentales (presión y tensión).

A fin de obtener mayor información sobre los resultados precedentes, se estudió la distribución temporal de la emisión espontánea para más de cien transiciones pertenecientes a distintas especies iónicas, y la emisión láser junto con su espontáneo. Se examinó el comportamiento en función de las distintas variables experimentales. Bajo las mismas condiciones, las transiciones pertenecientes al mismo grado iónico presentaron una distribución temporal similar, lo que permitió realizar la asignación iónica de las líneas sin clasificar. Se observó que los iones más altos seguían al pulso de corriente, mientras que el resto presentó una crecida inicial seguido de una disminución relativa en su intensidad, que se reducía al aumentar el grado iónico. Se detectó un progresivo retraso en el comienzo de la emisión con el grado iónico, que se reduce al aumentar la energía de descarga. De lo anterior se concluyó que, dado que aún las especies más bajas (Xe II) presentan un retraso observable, el proceso de

excitación se realiza en etapas sucesivas.

El estudio simultáneo del láser y el espontáneo mostró que en líneas generales, el primero estaba regido por el segundo; es decir la emisión estimulada depende fundamentalmente de la población del nivel superior. Los iones más altos presentaron una distribución temporal similar al del pulso de corriente. Bajo éstas condiciones la emisión láser consiste típicamente en un único pulso. Al aumentar la energía de excitación se observó doble pulso temporal del láser cuando su espontáneo mostraba una crecida inicial para luego disminuir a valores más pequeños. Finalmente aumentando aún más el bombeo, la inversión de población presentó un único pico centrado en el máximo del espontáneo.

Por medio del análisis resuelto en tiempo, fue posible reasignar a varias de las líneas que presentan emisión estimulada y relacionarlas a transiciones ya clasificadas por otros autores. Durante éste trabajo se clasificaron como pertenecientes al Xe V a 13 de las transiciones láser observadas, entre las configuraciones:  $5s^25p4f$  para los niveles superiores y  $5s^25p5d$  y  $5s5p^3$  para los inferiores.

Cálculos Hartree-Fock relativistas ab-initio y de diagonalización de la matriz de energía fueron realizados, a fin de determinar los tiempos de vida y probabilidad de transición de las líneas láser. Se obtuvo que los tiempos de vida del nivel superior son mucho mayores que los del inferior, en acuerdo con el análisis realizado en base a los resultados experimentales.

Se analizaron los principales procesos que dan lugar al ensanchamiento de las líneas y los resultados se corroboraron con medidas realizadas.

Se desarrolló un modelo teórico para comprender los fenómenos observados en el plasma. Se incluyeron los principales mecanismos involucrados para nuestras condiciones de descarga: excitación, ionización, recombinación dielectrónica y emisión radiativa. El análisis de los resultados muestra que durante la crecida de la corriente, la población es transferida desde los iones más bajos a los más altos debido al proceso de ionización. Este despoblamiento causa una disminución en la intensidad de emisión de cada ion (proporcional a la densidad de población). Luego de alcanzar el máximo de corriente, son los mecanismos de recombinación los que dominan por sobre los de ionización mostrándose en algunos casos una segunda crecida, depen-

diendo de la especie iónica y de las condiciones de excitación. Aumentar la tensión o disminuir la presión produce un aumento en la energía cinética de los electrones, y en consecuencia se incrementa el proceso de ionización. El modelo también permite dar sustento teórico a los métodos de asignación iónica utilizados, teniendo en cuenta la dependencia de la intensidad con la tensión de descarga, con la presión y por su comportamiento temporal.

El análisis de los niveles y configuraciones por medio de cálculos Hartree-Fock relativistas permiten concluir que el modelo de funcionamiento del láser para todos los casos es de cuatro niveles. Esto se sustenta por los resultados obtenidos para las intensidades de oscilador, entre los niveles que dan lugar al láser con el resto por transiciones ópticamente permitidas. Fue posible identificar las principales fuentes de excitación de los niveles que dan lugar a la emisión estimulada para las transiciones más importantes pertenecientes a distintos iones.

Se incluyó luego en el modelo para la emisión espontánea los términos estimulados. La solución mostró la posibilidad de comportamiento oscilatorio y reprodujo los principales resultados observados. Permite también predecir la existencia de láseres cuasicontinuos como fue observado experimentalmente y conocer el rango de energía óptimo para la excitación de cada ion.

Se realizaron medidas de la ganancia de varias de las líneas más intensas, las que corroboraron los cálculos realizados para las mismas, bajo condiciones típicas de descarga. Esto permite respaldar al modelo y a los mecanismos de excitación propuestos.

El sistema de ecuaciones utilizado es aplicable a otros gases nobles y en particular permite explicar el comportamiento de la emisión láser bajo condiciones de descarga similares a las nuestras. Dado que para éste tipo de láseres el tiempo de vida del nivel superior rige a la emisión, es posible interpretar con los mismos argumentos aquí utilizados, la distribución temporal de doble pulso obtenida.

La inclusión de medidas de parámetros de la descarga, como así también la inclusión en el modelo de ecuaciones para el circuito y su dependencia con el radio, permitirían comprender y profundizar el conocimiento tanto del láser como de la emisión espontánea.

Si bien el láser de xenón es conocido y ha sido estudiado desde hace más de 30 años éste trabajo brinda por primera vez, una descripción global del plasma y de dicha emisión.

# Bibliografía

- [1] W. B. Bridges, and A. N. Chester, Appl. Opt. **4**, 573 (1965).
- [2] W. B. Bridges, and A. N. Chester, IEEE J. Quantum Electron. **QE-1**, 66 (1965).
- [3] P. K. Cheo, and H. G. Cooper, J. Appl. Phys. **36**, 1862 (1965).
- [4] S. Hattori, and T. Goto, J. Appl. Phys. **39**, 5998 (1965).
- [5] E. Sakuma, and T. Tako, Japan J. Appl. Phys. **13**, 1489 (1974).
- [6] T. W. Hansch, A. L. Schawlow, and P. Toschek, IEEE J. Quantum Electron. **QE-9**, 553 (1975).
- [7] L. D. Schearer, IEEE J. Quantum Electron. **QE-11**, 935 (1975).
- [8] D. W. Fahey, and L. D. Schearer, IEEE J. Quantum Electron. **QE-14**, 220 (1978).
- [9] J. Pinard, and L. Liberman, Opt. Commun. **20**, 344 (1977).
- [10] J. Tocho, R. Duchowicz, M. Gallardo and M. Garavaglia, IEEE J. Quantum Electron. **QE-17**, 1591 (1981).
- [11] J. Marling, IEEE J. Quantum Electron. **QE-11**, 822 (1975).
- [12] A. Papayoanou and I. Gumeiner, J Appl. Phys. **42**, 1914 (1971).
- [13] A. Papayoanou, R. Buser, and I. Gumeiner, IEEE J. Quantum. Electron. **QE-9**, 580 (1973).



- [14] M. Gallardo, M. Garavaglia, A. Tagliaferri and E. Gallego Lluesma, IEEE J. Quantum Electron. **QE6**, 745, 1970.
- [15] E. Gallego Lluesma, A. Tagliaferri, C. Massone, M. Garavaglia and M. Gallardo, J. Opt. Soc. Am. **63**, 362 (1973).
- [16] A. Tagliaferri, E. Gallego Lluesma, M. Garavaglia, M. Gallardo and C. Massone, Optica Pura y Aplicada **7**, 89 (1974).
- [17] M. Gallardo, C. Massone, A. Tagliaferri, M. Garavaglia and W. Persson, Phys. Scr. (Europhysics Journal) **19**, 538 (1979).
- [18] J. Reyna Almandos, M. Gallardo and M. Garavaglia, Optica Pura y Aplicada **15**, 1 (1982).
- [19] D. Iriarte, O. Di Rocco, M. Raineri, J. Reyna Almandos and M. Gallardo, Journal of Molecular Structure, Teochem. Special Issue **210**, 253 (1990).
- [20] J. Reyna Almandos, F. Bredice, M. Gallardo, C. Pagan, H. Di Rocco and A. Trigueiros, Phys. Rev. A **43**, 6098 (1991).
- [21] M. Gallardo, M. Raineri and J. Reyna Almandos, Zeitschrift für Physik D **30**, 261 (1994).
- [22] M. Gallardo, M. Raineri, J. Reyna Almandos, O. Di Rocco, D. Bertucceli and A. Trigueiros, Phys. Scr. **51**, 737 (1995).
- [23] M. Gallardo, F. Bredice, M. Raineri and J. Reyna Almandos, Appl. Opt **28**, 4513 (1989).
- [24] V. Hoffmann, and P. Toschek, J. Opt. Soc. Am. **66**, 152 (1976).
- [25] G. Bertuccelli, H. Di Rocco, H. Ranea Sandoval, and A. Sherar, J. Appl. Phys **69**, 7500 (1991).
- [26] R. Duchowicz, D. Schinca, and M. Gallardo, IEEE J. Quantum Electron. **QE-30**, 155 (1994).

- [27] S. Kobayashi, T. Izawa, K. Kawamura and M. Kamiyama, IEEE J. Quantum Electron. QE-10, 699 (1966).
- [28] W. Sasaki and S. Saito, Applied Optics, vol. 19, p. 5, (1980).
- [29] F. Sampayo, "*Espectroscopía temporal del láser iónico de xenón*", Trabajo de Diploma Dpto. de Física, Fac. Ciencias Exactas, Univ. Nac. de La Plata (1984).
- [30] C. Cohen-Tanoudji, J. Dupont-Roc and G. Grynberg, "*Processus d'Interaction Entre Photons et Atomes*", Inter Editions de CNRS, Paris (1988).
- [31] R. Cowan, "*The Theory of Atomic Structure and Spectra*", University of California, Berkeley, Calif. (1981).
- [32] H. Di Rocco, "*Física Atómica Aplicada*", Universidad Nacional del Centro de la Pcia de Bs. As (1995).
- [33] M. Raineri, "*Espectroscopía de Gases Nobles Altamente Ionizados*", Tesis Doctoral, UNLP (1991).
- [34] R. Cowan, "*Cowan Matrix Calc. and Cowan Least-Square Programs*", Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos USA (1968).
- [35] I. Sobelman, "*Atomic Spectra and Radiation Transitions*", Springer-Berlag, New York (1979).
- [36] J. Jackson, "*Electrodinámica Clásica*", Ed. Alhambra, 2° Ed. (1980).
- [37] W. Demtröder, "*Laser Spectroscopy*", Springer-Verlag (1981).
- [38] M. Pöckl, M Hebenstreit, T. Neger and F. Aumayr, J. Appl. Phys. **76**, 733 (1994).
- [39] M. Baranger, "*Atomic and Molecular Processes*", Academic Press, New York (1962).
- [40] H. Griem, Phys. Rev. **165**, 258 (1968).

- [41] M. Seaton, *"Atomic and Molecular Processes"*, Academic Press Inc, New York (1962).
- [42] I. Sobelman, L. Vainshtein and E. Yukov, *"Excitations of Atoms and Broadening of Spectral Lines"*, Springer Verlag, Berlin (1981).
- [43] V. Golant, A. Zilinskij, I. Sacharov, *"Fondamenti di fisica dei plasmi"*, Ed. Mir (1983).
- [44] C. willett, *"Introduction to Gas Lasers: Population Inversion Mechanisms"*, Oxford: Pergamon (1974).
- [45] M. Born, Z. Physik **38**, 803 (1926).
- [46] W. Lochte-Holtgreven, *"Plasma Diagnostics"*, North-Holand, Amsterdam (1968).
- [47] R. Huddleston and S Leonard, *"Plasma Diagnostic Techniques"*, Academic Press, New York (1965).
- [48] H. Van Regemorter, Astrophys. J. **132**, 906 (1962).
- [49] W. Lotz, Z. Physik **232**, 101 (1970).
- [50] M. Spiegel y L. Abellanas, *"Manual de Fórmulas"*, Serie Schaum, Ed. Mc. Graw Hill (1988).
- [51] A. Burgess, Astrophys. J. **139**, 776 (1967).
- [52] H. Boot, and D. Clunie, Nature **197**, 173 (1963).
- [53] A. Siegman, *"Lasers"*, University Science Books (1986).
- [54] V. Aguilar, Informe de Beca de Entrenamiento, CIC (1995).
- [55] F. Bredice, *"Análisis Espectral del Kriptón Dos y Tres Veces Ionizado"*, Tesis Doctoral, UNLP (1986).
- [56] D. Schinca, R. Duchowicz and M. Gallardo, LAMP Series Report, International Centre for Theoretical Physics, ICTP, Trieste, Italy (1992).

- [57] M. Wang, A. Arnesen, R. Hallin, F. Heijkenskjöld, A. Langereis, M. Larsson, C. Nordling and A. Wönnström, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 1650 (1996).
- [58] W. Bridges and G. Mercer, IEEE J. Quantum. Electron. **QE-5**, 476 (1969).
- [59] M. Gallardo, M. Raineri and J. Reyna Almandos, Z. Phys. D **30**, 261 (1994).
- [60] M. Larsson, A. Gonzales, R. Hallin, F. Heijkenskjöld, B. Nyström, G. O 'Sullivan, C. Weber and A. Wännström, Phys. Scr. **53**, 1048 (1996).
- [61] M. Gallardo, M. Raineri, J. Reyna Almandos, H. Sobral and F. Callegari, J. Quantitative and Radiative Transfer **61**, 319 (1998).
- [62] A. Tauheed, Y. Joshi, V. Kaufman, J. Sugar and E. Pinnington, J. Opt. Soc. Am. B **10**, 561 (1993).
- [63] W. Persson , C. Wahlström, G. Bertuccelli, H. Di Rocco, J. Reyna Almandos and M. Gallardo, Phys. Scr. **38**, 347 (1988).
- [64] M. Larsson, A. Gonzalez, R. Hallin, F. Heijkenskjöld, R. Hutton, A. Langereis, B. Nynström, B. Sullivan and A. Wönnström, Phys. Scr. **51**, 69 (1995)
- [65] M. Klein, Appl. Phys. Lett. **17**, 29 (1970).
- [66] E Spitzer, *"Physics of Fully Ionized Gases"*, New York: Interscience-Wiley (1962).
- [67] A. Sherar, *"Descargas Eléctricas Capilares Pulsadas"*, Tesis Doctoral, Tandil (1998).
- [68] W. Simmons and Robert Witte, IEEE J. Quantum. Electron. **QE-6**, 466 (1970).